UNIVERSITE DE NANCY I

U.E.R. SCIENCES DE LA MATIERE

THESES

Présentées à l'Université de NANCY I
Pour l'obtention du Titre de
DOCTEUR – INGENIEUR

par

Guy CLAUS
Ingénieur ENSIC

Première Thèse

CONTRIBUTION A L'ETUDE DES LITS FLUIDISES GARNIS HYDRODYNAMIQUE ET PERSPECTIVES INDUSTRIELLES

Deuxième Thèse

LA FLOCULATION ET LA COAGULATION ASPECTS FONDAMENTAUX ET ASPECTS PRATIQUES

SOUTENUES LE 27 NOVEMBRE 1974, DEVANT LA COMMISSION D'EXAMEN

Membres du Jury

P.	LE GOFF	Président
C.	PROST	Examinateurs
G.	COGNET	
M.	PERRUT	Invité

C.N.R.S. N° A.O. 10 730

UNIVERSITE DE NANCY I

U.E.R. SCIENCES DE LA MATIERE

THESES

Présentées à l'Université de NANCY I
Pour l'obtention du Titre de
DOCTEUR – INGENIEUR

par

Guy CLAUS
Ingénieur ENSIC

Première Thèse

CONTRIBUTION A L'ETUDE DES LITS FLUIDISES GARNIS HYDRODYNAMIQUE ET PERSPECTIVES INDUSTRIELLES

Deuxième Thèse

LA FLOCULATION ET LA COAGULATION ASPECTS FONDAMENTAUX ET ASPECTS PRATIQUES

SOUTENUES LE 27 NOVEMBRE 1974, DEVANT LA COMMISSION D'EXAMEN

Membres du Jury

P.	LE GOFF	Président
C.	PROST	Examinateurs
G.	COGNET	
M.	PERRUT	Invité

C.N.R.S. N° A.O. 10 730

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

A mes parents

A mes amis

AVANT-PROPOS

Le présent travail a été éffectué au Centre de Cinétique Physique et Chimique du CNRS sous la direction de Monsieur le Professeur LE GOFF. Nous tenons à lui exprimer notre gratitude pour la confiance qu'il nous a accordée et pour la formation qu'il a su nous assurer.

Nous sommes reconnaissant à Monsieur PROST, Professeur à l'Institut Universitaire de Technologie de Nancy, de bien vouloir participer à notre Jury et de porter ainsi de l'intérêt à notre travail.

Nous sommes touchés par la présence dans notre Jury de Monsieur COGNET, Professeur à l'Ecole Nationale Supérieure d'Electricité et de Mécanique et nous l'en remercions vivement.

En la personne de Monsieur PERRUT, membre de notre Jury, nous remercions très vivement la Société ELF-ERAP pour le soutien financier qu'elle a apporté à notre travail ainsi que pour les contacts enrichissants qu'elle nous a permis d'établir avec les chercheurs du Centre de Recherche de Solaize grâce à l'attention de Messieurs VERNET et COUSIN.

Nous tenons également à remercier Monsieur VERGNES, Chef de l'équipe "Fluidisation" du Centre de Cinétique, pour les judicieux conseils qu'il nous a prodigués et qui ont contribué à la progression de ce travail.

Le montage de nos appareils de recherche a été réalisé par le personnel de l'Atelier de mécanique, Messieurs SCHEREFFER, LOUIS, MESSAGER, THIEMONGE et THIRION. Nous les remercions très chaleureusement. En la personne de Madame TEMPERE, qui s'est chargé de la frappe de ce mémoire, nous tenons à remercier tout le personnel administratif.

Enfin, nous garderons un excellent souvenir de tous nos amis du Centre de Cinétique et du Département de Génie Chimique de l'ENSIC ; nous exprimons particulièrement notre sympathie à nos collègues de l'équipe "Fluidisation" avec lesquels nous eûmes de fréquentes discussions fructueuses et intéressantes.

PLAN GENERAL

INTRODUCTION GENERALE

1ère PARTIE - LE LIT FLUIDISE GARNI : PRESENTATION ET DESCRIPTION

Chapitre 1 - LES INCONVENIENTS DE LA FLUIDISATION ET LEURS REMEDES
11 - Inconvénients des lits fluidisés
12 - Remèdes

Chapitre 2 - LE LIT FLUIDISE GARNI : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE
21 - Hydrodynamique
22 - Mélangeage
23 - Transfert de chaleur
24 - Autres aspects
25 - Conclusion

2ème PARTIE - ETUDE EXPERIMENTALE

Chapitre 3 - MONTAGE ET MATERIEL EXPERIMENTAL
31 - Objet de notre recherche expérimentale
32 - Les deux colonnes de fluidisation
33 - Matériaux utilisés
34 - Principe des mesures
35 - Déroulement des mesures

Chapitre 4 - ETUDE EXPERIMENTALE
41 - Notations, définitions et aspects théoriques
42 - Etude préliminaire
43 - Expansion du lit
44 - Lit lâche, lit dense, engorgement
45 - Perte de charge
46 - Frictions grains-garnissage
47 - Conclusion

3ème PARTIE - APPLICATIONS DU LIT FLUIDISE GARNI

Chapitre 5 - APPLICATIONS DES LITS FLUIDISES GARNIS
51 - Applications
52 - Conception d'un lit fluidisé garni
53 - Conclusion

Chapitre 6 - UNE ETUDE PROSPECTIVE : LE LIT FLUIDISE GARNI COMME REACTEUR CATALYTIQUE
61 - Modèle représentatif du réacteur
62 - Application à l'anhydride phtalique
63 - Résultats et discussion
64 - Conclusion

CONCLUSION GENERALE

NOMENCLATURE

ANNEXES

Annexe 3.1 - Détail complémentaires sur l'appareillage expérimental
Annexe 4.1 - Le flux de dérive - Interprétation et aspect pratique
Annexe 4.2 - Contre-courant gaz-solide et instabilité
Annexe 4.3 - Etude d'un lit pistonnant
Annexe 4.4 - Fluidisation très diluée à contre-courant
Annexe 6.1 - Ecriture du modèle du réacteur
Annexe 6.2 - Cinétique physique et chimique autour d'un grain de catalyseur
Annexe 6.3 - Estimation des paramètres du lit fluidisé garni

FIGURES

INTRODUCTION GENERALE

La mise en contact d'un gaz et d'un solide divisé est habituellement réalisée dans l'industrie par l'une des méthodes suivantes : lit fixe, lit fluidisé éventuellement étagé, lit mobile descendant ou plus récemment lit transporté dilué et ascendant. Aucun de ces dispositifs ne peut être avantageusement utilisé dans tous les cas. Ainsi, un inventaire des applications industrielles du lit fluidisé montre que ceux-ci sont utilisés seulement dans les cas où leurs propriétés rhéologiques (crackage catalytique des coupes pétrolières lourdes) ou thermiques (oxychloration et ammoxydation des éthylèniques) sont précieuses. Sinon, le lit fluidisé peut être économiquement défavorable du fait des graves inconvénients suivants :

- Un mauvais contact gaz-solide rend difficile l'obtention de conversions élevées.

- L'attrition du solide ne permet pas d'utiliser un catalyseur trop fragile et l'on doit toujours utiliser des grains robustes, fut-ce au détriment de leurs propriétés chimiques.

- L'ignorance de modèles mathématiques et de données physiques rend l'extrapolation hasardeuse et contraint à des études coûteuses au stade pilote .

Face à cette situation, il est frappant de constater qu'au vu des milliers de publications scientifiques consacrées à la fluidisation (plus que la distillation, la filtration ou même la thermodynamique [1]), les préoccupations principales des chercheurs de génie chimique se limitent à une recherche très fondamentale, portant principalement sur les "bulles académiques" (nous entendons par là les bulles injectées artificiellement dans un lit fluidisé). Il ne faut pas négliger l'intérêt de tels travaux qui apportent une connaissance du phénomène si complexe de bullage et pourraient, à longue échéance, rendre possible le calcul des unités industrielles. Mais cette attitude ressemble trop à celle de ce médecin qui analyse la maladie sans chercher à soigner le patient.

Une attitude plus pragmatique consiste à chercher des moyens d'améliorer la fluidisation. Des palliatifs ont été proposés et certains sont employés dans l'industrie. Dans la première partie de ce travail, nous montrerons que ces remèdes correspondent chacun à des problèmes bien précis et ne peuvent pas élargir sensiblement le domaine d'application du lit fluidisé. Cependant, l'immersion d'un garnissage très poreux dans le lit fluidisé fait exception à cette règle. Principalement étudiés par des chercheurs canadiens, ces lit fluidisés garnis suppriment les inconvénients de la fluidisation et en gardent les avantages.

Dans bien des cas, les applications peuvent se faire avec une circulation de solide (adsorption, désorption, récupération de chaleur, réacteur à lit consommable) et pour des raisons d'efficacité, on cherche à opérer à contre-courant. Le lit fluidisé garni à contre-courant n'a pas été étudié par les chercheurs canadiens. Dans la deuxième partie, nous présenterons le travail expérimental que nous y avons consacré et qui s'est limité à l'aspect hydrodynamique :

en matière de fluidisation, tous les phénomènes de transferts internes (de matière et de chaleur) sont régis en partie par l'hydrodynamique et une bonne connaissance de celle-ci est toujours requise [2]. Au point de vue fondamental, de profondes analogies ne doivent pas manquer avec les travaux effectués ces dernières années dans notre laboratoire sur les écoulements de deux phases (liquide-liquide et gaz-liquide) à contre-courant.

L'étude des applications du lit fluidisé garni sera exposée dans la troisième partie. Nous essayerons de donner les principes sur lesquels doit se baser une bonne conception du lit fluidisé garni, principes qui ne sont pas forcément ceux de la fluidisation classique. Une application particulière, celle de la réaction catalytique, sera étudiée par des voies théoriques, en s'appuyant sur les résultats des chercheurs canadiens.

BIBLIOGRAPHIE

[1] P. LE GOFF
"Trente ans de fluidisation... et maintenant ?"
Conférence de clôture - Congrès de fluidisation, Toulouse 1973

[2] O. LEVENSPIEL
"Mixing flow patterns"
Conférence au Centre de Cinétique du CNRS, 17 Septembre 1973

1ère Partie

LE LIT FLUIDISE GARNI : PRESENTATION ET DESCRIPTION

PLAN DU CHAPITRE 1

1 - CARACTERISTIQUES DES LITS FLUIDISES. INCONVENIENTS

- 11 - COURT-CIRCUITAGE DU GAZ PAR LES BULLES
- 12 - BOUCHONNAGE
- 13 - EXTRAPOLATION
- 14 - MELANGEAGE
- 15 - AUTRES INCONVENIENTS
- 16 - DOMAINE D'APPLICATION DE LA FLUIDISATION

2 - PALLIATIFS

- 21 - PULSATION DU DEBIT GAZEUX
- 22 - AGITATION DU LIT
- 23 - IMMERSIONS D'OBSTACLES
  - 231 - Tubes et tiges horizontaux et verticaux
  - 232 - Plateaux perforés horizontaux
  - 233 - Garnissages
- 24 - CONCLUSION

CHAPITRE 1 INCONVENIENTS DE LA FLUIDISATION - PALLIATIFS

1 - DESCRIPTION DU LIT FLUIDISE - INCONVENIENTS

Les lits fluidisés gaz-solide, contrairement aux lits fluidisés liquide-solide, sont hétérogènes ou agrégatifs. Ils sont constitués d'une part par une émulsion gaz-solide homogène aux conditions voisines du minimum de fluidisation et d'autre part par des bulles de gaz pratiquement exemptes de solide. C'est ce qui explique les principaux inconvénients du lit fluidisé.

11 - COURT CIRCUITAGE DU GAZ PAR LES BULLES

Contrairement au cas du lit fixe, le contact gaz-solide est mal défini dans un lit fluidisé car une partie du gaz ne "voit" pas le solide. Le modèle de bulle de DAVIDSON & HARRISON [1] donne une bonne image de ce court-circuit. Le croquis A montre qu'il existe une "poche" de gaz qui reste dans la bulle et qui est d'autant plus grande que la bulle va plus vite. La vitesse ascensionnelle d'une bulle est proportionnelle à la racine carrée de son diamètre et on préférera une fluidisation donnant de petites bulles (fluidisation "douce").

Croquis A - Lignes de courant au voisinage d'une bulle unique d'après le modèle de DAVIDSON [1]

ub = vitesse ascensionnelle de la bulle
ug = vitesse du gaz dans l'émulsion

12 - BOUCHONNAGE

Lorsque le lit fluidisé a un rapport hauteur/diamètre trop élevé, les bulles peuvent atteindre une taille comparable au diamètre du lit et en occupent toute la section : c'est le bouchonnage. Un critère prévisionnel de

ce phénomène a été donné par STEWART [2],

$$\frac{U - U_{mf}}{0,35\sqrt{gd_t}} > 0,2 \qquad (1)$$

Cette expression empirique est souvent vérifiée dans les appareils de laboratoire , même dans ceux de diamètre supérieur à 50 cm. En fait, le bouchonnage a pour effet d'améliorer sensiblement le contact gaz-solide et on pourrait envisager de l'utiliser tel quel. Mais pour des raisons de production, on serait obligé de multiplier les tubes de petits diamètres, ce qui -selon ZENZ [3]- complique la conception de l'installation (distribution du gaz) et rend l'ensemble assez onéreux. De plus, quiconque a vu un lit bouchonnant a été frappé par la violence de ce phénomène. En effet, il donne lieu à de très larges fluctuations de pression et de hauteur du lit. L'attrition des grains s'en trouve accrue et l'installation doit pouvoir supporter des efforts mécaniques très importants.

13 - EXTRAPOLATION

Il arrive souvent que le critère (1) soit vérifié dans l'unité de laboratoire, mais pas dans l'unité productrice de grand diamètre : les bulles y atteignent leur diamètre maximum et le contact est beaucoup moins bon. La conversion est donc diminuée et le procédé peut ne plus être économique. Ce fut le cas des premiers essais de synthèse industrielle des hydrocarbures (Fisher-Tropsch) peu après la dernière guerre [3, 4].

Depuis, bien des connaissances ont été acquises sur la fluidisation -notamment sur les bulles- et un grand nombre de modèles ont été proposés. Cela a poussé certains auteurs à imaginer une stratégie de conception qui permettrait de se passer du pilote [5]. En fait, ceci est encore utopique. Selon VAN SWAAY [6], les "points-clefs" (diamètre des bulles et transfert de matière bulle-émulsion) sont encore trop mal connus. A l'heure actuelle, le mieux qu'on puisse faire est d'utiliser un modèle simple, phénoménologique ("à deux phases") comportant des paramètres peu nombreux et faciles à mesurer. On utilise ce modèle pour chercher des tendances du comportement du lit fluidisé. C'est ce que propose BOTTON [7]. Toutefois, on doit construire un pilote et cela coûte cher.

14 - MELANGEAGE

Au cours de leur ascension, les bulles véhiculent dans leur sillage une certaine quantité de solide (20 à 40 % du volume de la bulle). Cela crée en compensation un débit descendant de solide, dans la phase émulsion, qui peut être assez grand pour entraîner le gaz vers le bas. Ce recyclage du gaz donne au lit son comportement "parfaitement mélangé" pour le gaz. On sait que cela est néfaste pour obtenir de bonnes conversions et de bonnes sélectivités.

La phase solide est elle-même bien mélangée, ce qui permet l'homogénéisation du lit en température, mais peut devenir défavorable si on veut traiter le solide (réaction non catalytique) et on est amené à étager le lit en lits fluidisés superposés.

15 - AUTRES INCONVENIENTS

En général, les lits fluidisés industriels opèrent à grande vitesse de gaz : de cette manière, une partie des particules est entraînée au-dessus du lit, dans la "zone de désengagement". Cela contraint à installer des systèmes de récupération (cyclones pour recycler les grains, filtres pour les éliminer des gaz de sortie). De plus, le lit est agité violemment aux fortes vitesses de gaz et en conséquence, l'attrition des grains peut être importante. Il est toujours recommandé d'employer un catalyseur très solide si l'on ne veut pas "faire du talc". La perte en solide d'un lit fluidisé peut-être importante : pour une unité de crackage catalytique, elle se chiffre en tonnes par jour.

Ajoutons que les grandes vitesses atteintes localement par les particules provoquent l'abrasion des parties particulièrement exposées : bouches de cyclones, trous de grille...

16 - DOMAINE D'APPLICATION DE LA FLUIDISATION

Deux grands avantages restent acquis à la fluidisation :

- les propriétés rhéologiques (fluidité)
- les bons transferts thermiques internes, ou entre le lit et les obstacles fixes ou la paroi.

Ces propriétés sont précieuses dans des opérations industrielles où d'autres procédés (le lit fixe par exemple) sont problématiques. Citons :

- réactions catalytiques ayant une forte thermicité, telles que : synthèse de l'anhydride phtalique, de l'acrylonitryle ou de l'oxyde d'éthylène.
- Traitement en continu du solide pour réaction chimique (calcination, grillage des minerais sulfurés, réduction du minerai de fer), régénération (cracking catalytique), adsorption (élimination de vapeurs organiques sur charbon actif).
- Immersion d'objets pour leur traitement (dépôt d'une pellicule protectrice).
- Mélangeage ou ségrégation des poudres
- Manutention des poudres.

Ceci ne saurait définir avec précision un "domaine réservé" au lit fluidisé. En cas de dilemme entre lit fixe et lit fluidisé, il faut savoir que ce dernier est bien plus compliqué et comporte toujours un certain risque. Une connaissance non pas seulement livresque mais surtout acquise sur des unités industrielles est alors requise [5]. Cette nécessité n'est pas favorable au lit fluidisé.

17 - CONCLUSION

Cette présentation fort sommaire des inconvénients du lit fluidisé montre qu'ils ont tous la même cause : la présence des bulles. Pour trouver de nouvelles applications, il faut rechercher la "fluidisation sans bulles".

2 - PALLIATIFS

Ces remèdes proposés visent en général à "casser" les bulles, ou à empêcher leur croissance. Comme le montrent les calculs de JACKSON [8], les bulles sont fragiles, leur "plafond" est fait d'une couche d'émulsion gaz-solide plus diluée que l'ensemble de la phase émulsion ; ceci rend la bulle apte à se couper en deux.

Plusieurs types de remèdes ont été proposés : on peut pulser le lit, l'agiter ou y immerger des obstacles.

21 - PULSATION DU DEBIT GAZEUX

D'où viennent les bulles ? De nombreuses études théoriques ont montré qu'une fluidisation homogène par gaz est instable, c'est-à-dire qu'une petite fluctuation du débit gazeux provoque toujours une fluctuation de la concentration constamment croissante évoluant vers la bulle. Mais selon MOLERUS [9], lorsque la fluctuation du débit a une fréquence suffisamment grande (supérieure à 25 Hz) l'effet est inverse : l'émulsion reste stable. Supprimant les bulles, le remède radical serait très envisageable car les fréquences industrielles (50 ou 100 Hz) conviennent. Mais ces travaux purement théoriques n'ont reçu aucune vérification expérimentale.

En fait, les recherches ont plutôt porté sur les basses fréquences, inférieures à 10 Hz. Lorsque la fluidisation naturelle est déjà assez bonne, on peut de cette façon diminuer le court-circuitage du gaz [10]. En fait, ce palliatif est surtout intéressant lorsque la poudre est trop cohésive (excès d'humidité ou granulométrie trop fine) pour être bien fluidisable : on empêche la formation de "trous de rats" (galeries par où passe le gaz,la majeure partie du lit étant défluidisée) et on augmente le transfert de chaleur [11]. En contre-partie, la perte de charge est accrue de 10 à 20 %.

Quelques applications sont indiquées par KOBAYASHI et coll [12] : mélangeage de grains (Etats-Unis), séchage de granulés organiques (Allemagne et URSS) et préparation de l'uranium pulvérulent à partir de U_3O_8 en quatre étapes (Etats Unis). Dans tous ces cas, la pulsation a permis de fluidiser des poudres très cohésives, et souvent, le lit fluidisé pulsé a de très nets avantages sur les autres procédés.

22 - AGITATION DU LIT

On peut aussi"casser"les bulles avec un mélangeur mécanique (agitateur rotatif par exemple). Ceci n'est pas mauvais au laboratoire, encore faut-il multiplier le nombre de pales, mais la consommation d'énergie par l'agitateur est proportionnelle au cube du diamètre du réacteur, et devient prohibitive pour l'unité industrielle. De plus, l'insertion de cet agitateur dans le lit pose de gros problèmes technologiques [3].

On a aussi proposé de vibrer certaines parties du lit : grille (éventuellement rotative), chicanes... Mais ces moyens ne sont pas très commodes et n'amènent pas d'amélioration suffisamment importante pour être intéressants.

23 - IMMERSION D'OBSTACLES

Il est très fréquent qu'on immerge des obstacles dans un lit fluidisé industriel, par exemple, si la réaction est très exothermique, pour augmenter la surface d'échange calorifique. Nous reprendrons ici la même classification que GRACE & HARRISON [14].

231 - Tubes et tiges horizontaux et verticaux

La position horizontale n'est en général pas recommandée car elle favorise la création de "zônes mortes" où le solide est défluidisé. Le transfert de chaleur s'en trouve diminué. Cette position peut être satisfaisante aux basses vitesses, ou bien si le lit a un faible rapport hauteur sur diamètre, ou bien encore pour améliorer la distribution du gaz à la sortie du distributeur [14].

Pour les tubes verticaux, il faut distinguer deux cas : si le diamètre extérieur des tubes est du même ordre de grandeur que celui des bulles (quelques centimètres en général), on obtient un cloisonnement du lit qui peut promouvoir le bouchonnage et améliorer le contact gaz-solide. VOLK et coll. [15] ont ainsi simplifié le problème de l'extrapolation. En fait, il n'en est pas toujours ainsi et certains auteurs [4, 7] pensent que les tubes verticaux de grand diamètre peuvent améliorer une fluidisation déjà assez bonne, mais n'agissent pas efficacement sur une mauvaise fluidisation. Selon GRACE & HARRISON [14], les tiges de petit diamètre (1 cm environ) sont plus favorables : on obtient des petites bulles mieux distribuées dans le lit, car elles sont "canalisées" le long des tiges. Celles-ci peuvent être vibrées, ce qui homogénéise quelque peu le lit.En revanche, la vitesse ascensionnelle des bulles est accrue et par conséquent le court-circuit du gaz augmente.

En pratique, les chicanes verticales sont souvent combinées aux plateaux perforés horizontaux. Il y a plusieurs applications : gazéification de la houille [17], réaction catalytique (Hydrocol), réduction des minerais de fer par l'hydrogène [16].

232 - Garnissages

En 1950, MATHESON [18] a breveté l'utilisation d'un garnissage d'anneaux Raschig ou de selles de Berl au sein du lit pour donner au gaz un chemin tortueux. On peut dire que ces garnissages couramment utilisés en distillation, ayant une porosité inférieure à 95 %, ne conviennent pas. Pour peu que la poudre soit un peu cohésive, elle se défluidise dans le garnissage, il se crée des "zones mortes" et le contact gaz-solide devient finalement très mauvais [3, 4]. La mobilité des grains étant très réduite, le transfert de chaleur est diminué 2 à 4 fois [19, 20]. Le remède est pire que le mal.

GABOR [21] a effectué de nombreux travaux sur ce type de fluidisation, en vue d'une application bien précise : dans un lit fixe de pastilles assez grossières, il est intéressant de promouvoir les transferts de matière et de chaleur gaz-pastille et gaz -paroi. On y parvient en fluidisant des par-

ticules chimiquement inertes au sein du lit fixe. La conductibilité thermique interne du lit est multipliée par 75 [22]. Comme application industrielle de ce "lit fluidisé interstitiel", MECHAM et coll [23] ont fait fonctionner au stade pilote un réacteur de fluoration de l'uranium.

Au cours d'études de laboratoire, KOSTENBLATT [24] a utilisé la fluidisation interstitielle pour réduire les gradients de température. Cela lui a permis d'étudier la cinétique d'hydrogénation de l'éthylène sur catalyseur de nickel.

24 - CONCLUSION

Certains palliatifs sont pires que le mal : par exemple, l'agitation du lit ou l'installation d'un garnissage type distillation. Les autres correspondent individuellement à des problèmes bien précis et ne peuvent être efficaces que dans ce cas (voir tableau I.1). Ils n'amènent pas de grandes améliorations, de nature à accroître sensiblement le domaine d'application de la fluidisation : on ne s'est pas rapproché réellement d'une fluidisation "sans bulles".

Le lit fluidisé équipé d'un garnissage de grande porosité fait exception. Nous le décrivons dans le chapitre suivant.

Problème	Remède correspondant	Exemple d'applications
Poudre très cohésive donnant des "trous de rat"	Pulsation du débit de gaz, fréquence inférieure à 10 Hz	Réduction de U_3O_8 à U pulvérulent [12].
Extrapolation trop délicate	Réacteur pistonnant multitubulaire (?)	Synthèse de l'oxyde d'éthylène [25].
Grosse quantité de chaleur à évacuer	tubes verticaux de diamètre > 5 cm	Synthèse de l'acrylonitrile, procédé SOHIO [26].
Mauvaise distribution du gaz	Tubes horizontaux (?)	Cité par GRACE et HARRISON [14].
"Mauvais solide" donnant lieu à un fort court-circuitage du gaz	Plaques perforées superposées	Synthèse de l'acétate de vinyle par le procédé DUPONT [27]
Réacteur à lit fixe ayant des transferts gaz-solide insuffisant	Lit fluidisé interstitiel	Fluoration de l'Uranium [23]. Etudes cinétiques [24].

Tableau I.1.

Résumé des remèdes couramment proposés pour améliorer la fluidisation.

BIBLIOGRAPHIE

[1] J.F. DAVIDSON et D. HARRISON
"Fluidised particles"
Cambridge University Press (1963)

[2] S. HOVMAND et J.F. DAVIDSON
"Pilot plant and laboratory Scale fluidized reactors at high gas velocity ; the relevance of slug flow"
Chap. 5 in "Fluidization". Academic Press 1971

[3] F.A. ZENZ et D. OTHMER
"Fluidization and fluid-particles systems"
Reinhold-New York 1960

[4] M.A. BERGOUGNOU
Conférence au C.P.I.C., Nancy 1971

[5] D. GELDART
"Droping the pilot ? A strategy for the Design of Fluidized Bed Chemical Reactors"
The Chem. Eng. 238 (1970), 147

[6] W.P.M. VAN SWAAY et F.J. ZUIDERWEG
"The Design of Gas-solids Fluidized Beds Prediction of Chemical Conversion"
Congrès International, Toulouse, Octobre 1973

[7] R. BOTTON
"Etude du contact gaz-solide en lit fluidisé"
Conference au C.P.I.C. Nancy 1972.

[8] R. JACKSON
"The mechanics of fluidized beds"
Trans. Instr. Chem. Eng. 41 (1963), 22

[9] O. MOLERUS
"Hydrodynamic stability and stabilisation of the fluidized bed by means of forced vibrations of the fluid"
Proc. Intern. Symp. on Fluidisation (Eindhoven) (1967)

[10] H.W. WONG et M.H.I. BAIRD
"Fluidization of pulsed gas flow"
Chem. Eng. Journal 2(1971), 104

[11] P.G. ALFREDSON et I.D. DOIG
"A Study of pulsed fluidisation of fine powders"
Poc. Chemica 70 - Butterworth 1971

[12] M. KOBAYASHI, D. BAMASWAMI et W.T. BRAZELTON
"Pulsed bed approach to fluidization"
Chem. Eng. Prog. Symp. Ser. 105 (1970), 47

[13] R.D. JOLLY et I.D. DOIG
"Aspects of the performance of distribution in fluidized beds"
Aust. Chem. Eng., July 1972, p. 19

[14] J.R. GRACE et D. HARRISON
"The effect of intervals baffles in fluidised beds a guide to design"
I. Chem. E. Symp. Ser 27 (1968) 93

"Design of fluidised beds with interval baffles"
Chem. Proc. Eng. (June 1970), 127

"Fluidized beds with interval baffles"
in "Fluidization". Academic Press 1971, p. 599

[16] W. VOLK, C.A. JOHNSON et H.H. STOTLER
"Effect of reactor internal on quality of fluidization
Chem. Eng. Prog. Symp. Ser. 58 (1962), 38

[17] A.G. HORSLER et B.H. THOMPSON
"Fluidization on the development of gas making processes"
I. Chem. Eng. Symp. Ser. 30 (1968), 58

[18] G.L. MATHESON
"Process for contacting solids and gases"
Brevet US n° 2, 533, 026 (1950)

[19] J.P. SUTHERLAND, G. VASSILATOS, H. KUBOTA et G. LOSBERG
"The effect of packing on a fluidized bed"
A.I.Ch.E. Journal 9 (1963), 437

[20] C.F. CAPES, J.P. SUTHERLAND et A.E.McILHINNEY
"An experimental study of the effect of the effect of dump packing on wall to fluidized bed heat transfer"
Can. J. Chem. Eng. 46 (1968), 473

[21] J.D. GABOR
"Fluidized packed beds"
Chem. Eng. Prog. Symp. Ser. 62 (1960), 32

J.D. GABOR et N.J. MECHAM
"Radial gas mixing in fluidised packed beds"
I & EC Fund. 3 (1964), 60

J.D. GABOR
"Lateral transfer in a fluidised-packed bed"
A.I.Ch.E. Journal 11 (1965), 127

J.D. GABOR
"Lateral solid mixing in fluidised-packed beds"
A.I.Ch.E. Journal 10 (1964), 345

[22] E.N. ZIEGLER et W.T. BRAZELTON
"Radial heat transfer in a packed fluidized bed"
I & EC Proc. Des. & Dev. 2 (1963), 276

[23] W.J. MECHAM, J.D. GABOR et A.A. JONKE
"Pilot plant studies of a direct fluorination process applied to uranium dioxide reactor fuels"
Chem. Eng. Prog. Symp. Ser. 47 (1964), 76

J.D. GABOR, W.J. MECHAM et A.A. JONKE
"Heat transfer in fluidized-packed beds as applied to the fluorination of uranium dioxide pellets"
Chem. Eng. Prog. Symp. Ser. 47 (1964) 96

[24] S. KOESTENBLATT et E.N. ZIEGLER
"Kinetics and Deactivation on large catalytic Particles"
A.I.Ch.E. Journal 17 (1971), 891

E.N. ZIEGLER
"The interstitial fluid bed reactor"
Chem. Tech. (Nov. 1972), 690

[25] T.E. CORRIGAN
"New Process for Ethylène oxide by direct oxidation"
Pet. Ref. 32 (1953), 87

[26] Anonyme
"Anylonitrile"
Chem. Proc. Eng. Juin 1967

[27] D. KUNII et O. LEVENSPIEL
"Fluidization engineering"
John Wiley 1969

PLAN DU CHAPITRE 2

1 - HYDRODYNAMIQUE

11 - VITESSE MINIMALE
12 - BULLES
13 - LES DEUX REGIMES DE FLUIDISATION
14 - EXPANSION DU LIT. FLUIDISATION QUASI-PARTICULAIRE

2 - MELANGEAGE

21 - MELANGEAGE AXIAL DU GAZ
22 - MELANGEAGE DU SOLIDE
23 - DISCUSSION. INFLUENCE DU DIAMETRE DU REACTEUR

3 - TRANSFERT DE CHALEUR

31 - TRANSFERT A LA PAROI
32 - TRANSFERT AXIAL DE CHALEUR

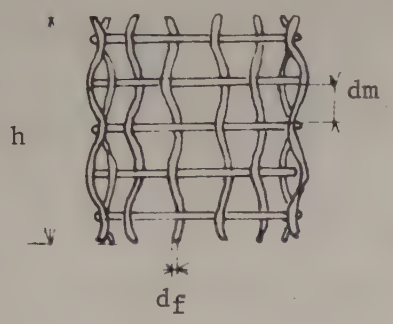
4 - AUTRES ASPECTS

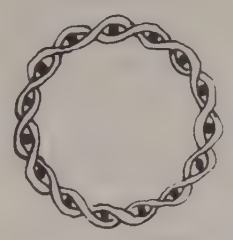
41 - SEGREGATION DES PARTICULES
42 - ENTRAINEMENT DES PARTICULES
43 - ABRASION
44 - ATTRITION

5 - CONCLUSION

CHAPITRE 2 LE LIT FLUIDISE GARNI : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

Les travaux de SUTHERLAND et coll. [1] publiés en 1963 dégagaient clairement les avantages d'un garnissage à structure grillagée et de forte porosité (> 95 %) pour améliorer la fluidisation. En pratique, il est constitué par l'empilement au hasard d'anneaux de grillage ("Screen cylinders") dont la hauteur h varie entre 0,7 et 15 cm, la maille dm entre 0,5 et 5 mm, le diamètre du fil étant généralement de 0,5 mm (voir croquis 2A). Une autre façon de réaliser le garnissage très poreux consiste à superposer des grilles horizontales dont la maille est de quelques centimètres et qui sont espacées de 1 ou 2 centimètres. Peu d'études ont été consacrées à ce dernier type de garnissage.





Croquis 2A
Anneau de grillage

Depuis 1963, les chercheurs du National Research Council d'OTTAWA ont mené une étude systématique du lit fluidisé garni, donnant lieu à une vingtaine de publications. Des études fondamentales ont permis de connaître son comportement : hydrodynamique, mélangeage, transfert de chaleur. Des applications ont été proposées.

1 - HYDRODYNAMIQUE

11 - VITESSE MINIMALE

On est surpris de constater que l'on trouve peu de données sur cet important paramètre. KANG et OSBERG [2] rapportent qu'elle est supérieure de 15 à 25 % à celle mesurée dans un lit classique. Mais ils ne précisent pas comment ils l'ont mesurée (ce qui est important).

12 - BULLAGE

Que deviennent les bulles en présence du garnissage ? Des auteurs ont montré que leur taille est réduite grossièrement aux dimensions de l'anneau et qu'elles sont réparties uniformément dans le lit [2]. On se rapproche donc bien d'une fluidisation douce et on ne peut observer de bouchonnage violent [1].

Ces observations visuelles sont confirmées par des méthodes plus objectives : l'enregistrement des fluctuations de pression en un point du lit

peut être réalisé à l'aide d'un manomètre rapide constitué d'une membrane reliée à une jauge de contrainte. Ces fluctuations correspondent aux passages des bulles et l'écart-type du signal enregistré permet d'apprécier la violence du bullage. Les résultats de KANG et coll. [3] sont rassemblés sur la figure (2.1). On voit que dans un lit fluidisé classique, l'intensité de bullage est monotone croissante avec la vitesse du gaz, alors que le garnissage fait apparaître un maximum à un taux d'expansion du lit voisin de 30%. De plus, ces fluctuations de pression sont d'autant plus faibles que l'anneau est moins grand et sa maille plus petite.

On peut aussi détecter et étudier les bulles à l'aide d'une sonde électrorésistive ; celle-ci délivre un signe qui prend une valeur 0 ou 1 selon qu'elle se trouve dans une bulle ou dans l'émulsion. PARK et coll. [4] ont ainsi vérifié que la taille des bulles est uniformisée et limitée. En conséquence, leur fréquence est accrue de 50 à 100 % par rapport au lit fluidisé classique.

13 - LES DEUX REGIMES DE FLUIDISATION

Mais, lorsque ces auteurs ont opéré à des vitesses de gaz élevées, le signal transmis par la sonde devenait inutilisable ; celle-ci ne discernait plus la phase bulle de l'émulsion : c'est le régime de fluidisation sans bulles. Visuellement, on ne peut observer des bulles, mais "des régions de densité plus ou moins grande" [4, 7]. La transition entre les deux régimes correspond au maximum des fluctuations de pression [3].

14 - EXPANSION DU LIT. FLUIDISATION "PSEUDO-PARTICULAIRE"

Selon la "théorie des deux phases" du lit fluidisé [8], une conséquence de la diminution de taille des bulles est l'augmentation de l'expansion du lit. Les mesures de KANG et OSBERG [2] le confirment en précisant même que l'expansion croît avec le nombre de maille par centimètre du garnissage.

Caractérisons l'expansion du lit par le degré de vide ε, défini comme :

$$\varepsilon = \frac{\begin{bmatrix}\text{Volume}\\ \text{du lit}\end{bmatrix} - \begin{bmatrix}\text{Volume du}\\ \text{garnissage}\end{bmatrix} - \begin{bmatrix}\text{Volume}\\ \text{des grains}\end{bmatrix}}{\begin{bmatrix}\text{Volume}\\ \text{du lit}\end{bmatrix} - \begin{bmatrix}\text{Volume du}\\ \text{garnissage}\end{bmatrix}} \qquad (2,1)$$

Dans le cas de lits fluidisés par liquide ou par gaz sous haute pression, ε est uniforme et on dit qu'on a affaire à une fluidisation homogène ou particulaire. L'expansion de ces lits obéit à la loi empirique de RICHARDSON et ZAKI [6] :

$$\frac{U}{U_t} = \varepsilon^n \qquad (2,2)$$

où U est la vitesse "en fût vide" du fluide et U_t la vitesse terminale de chute libre de la particule moyenne. L'exposant n ne dépend que du nombre de Reynolds

du grain Re_t et du rapport diamètre de la particule/diamètre du lit. En lit fluidisé garni et dans le régime de fluidisation sans bulles, CAPES et Mc ILHINNEY [7] ont mis en évidence une loi similaire :

$$\frac{U}{U_i} = \varepsilon^n \qquad (2,3)$$

ou U_i est une vitesse de référence différente de U_t (voir figure 2,2). Pour des particules d'un diamètre supérieur à 500μ, de densité comprise entre 0,96 et 11,3 g/cm^3, dans des colonnes de diamètre inférieure à 32 cm, ces auteurs proposent :

$$\begin{array}{lll} Re_t > 1400 & , & n = 2,37 \\ & & U_t/U_i = 1,38 \\ Re_t < 1400 & , & U_t/U_i = 0,96 + 3,04.10^{-4}\ Re_t \\ 150 < Re_t < 1400 & , & n = 3,16 - 5,72.10^{-4}\ Re_t \\ Re_t < 150 & , & n = 3,98 - 6,00.10^{-3}\ Re_t \end{array} \qquad (2,4)$$

où Re_t est le nombre de Reynolds du grain unique entre chute libre.

RICHARDSON et ZAKI [6] donnent n = 2,39 pour les grands nombres de Reynolds. La similitude des équations (2,2) et (2,3) est donc remarquable, mais ne démontre pas que le lit fluidisé garni dans le régime de fluidisation "sans bulles" est lui-même homogène. Ces relations sont purement empiriques.

Toute émulsion gaz-solide homogène est par nature instable ou "agrégative". De nombreuses approches théoriques montrent qu'une fluctuation locale de la porosité ne peut que croître jusqu'au stade final de la bulle. Nous pouvons penser qu'aux fortes vitesses du gaz, la présence du garnissage ne permet pas le développement total de ces fluctuations. Le caractère agrégatif demeure sans qu'on observe de bulles.

Aussi, à l'instar de CAPES et Mc ILHINNEY [7], doit on qualifier cette fluidisation de "quasi-particulaire".

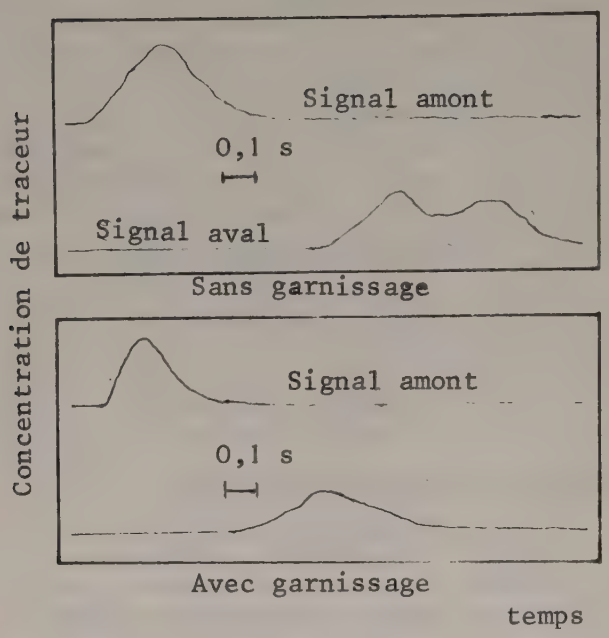
2 - MELANGEAGE

Dans un lit fluidisé classique, les bulles régissent les mélangeages du gaz et du solide : au cours de leur ascension, elles véhiculent du solide vers le haut dans le sillage, ce qui induit dans l'émulsion un débit de solide descendant, pouvant entraîner du gaz vers le bas. Ce processus de mélangeage est convectif et pour être décrit, il nécessite la connaissance des nombreux paramètres de l'hydrodynamique [8, 9]. On peut penser qu'il n'en est pas ainsi dans un lit fluidisé garni, où il n'y a pas de bulles.

21 - MELANGEAGE AXIAL DU GAZ

Du fait que la fluidisation est "douce" et que l'on opère avec des

grands rapports hauteur/diamètre, la notion de diffusion prend un sens dans le lit fluidisé garni : le croquis 2B montre que les signaux de concentration prennent une allure gaussienne lorsqu'on immerge le garnissage. PARK, CAPES et OSBERG [5] ont déterminé les courbes de distribution des temps de séjour du gaz par la méthode impulsionnelle de ARIS. Pour les interpréter, ils ont utilisé un modèle piston diffusionnel, corrigé pour tenir compte du gradient radial de vitesse au sein du lit.



Croquis 2B

Courbes de réponse impulsionnelle de PARK & Coll. [5]

Dans un lit fluidisé classique on peut toujours mesurer un pseudo-coefficient de diffusion qui n'a pas de sens physique rigoureux mais sert de point de comparaison. PARK et coll. ont ainsi mis en évidence la diminution de la diffusion axiale en présence du garnissage. Ils l'expliquent par la réduction de la taille des bulles. De plus, le mélangeage du gaz passe par un maximum (figure 2,3) situé à la limite entre le régime "à bulles" et le régime quasi-particulaire. La même remarque est faite par CHEN et OSBERG [10] pour le mélangeage radial.

S'appuyant sur des résultats similaires acquis en liquide-solide [11], PARK et coll. pensent que le nombre de Bodenstein :

$$Bo = \frac{U.dp}{D_g}$$

ne dépend que de dp et de ε. D_g est le coefficient de diffusion axiale et dp le diamètre moyen des particules (Figure 2,3). Le modèle piston diffusionnel et leurs résultats leur permettent alors de rendre compte des conversions mesurées par ISHII et OSBERG [12] sur l'isomérisation du cyclopropane dans un réacteur à lit fluidisé garni.

22 - MELANGEAGE DU SOLIDE

Comme pour le gaz, le mélangeage du solide en présence du garnissage obéit à un modèle diffusionnel. KANG et OSBERG représentent leurs résultats par la relation monotone croissante issue de considérations théoriques :

$$D_s = 257 \frac{(\varepsilon - \varepsilon_{mf})^2}{(1-\varepsilon)(1-\varepsilon_{mf})} \pm 12\ \% \qquad (2,5)$$

où D_s est le coefficient de diffusion axiale du solide exprimé en cm^2/s. Obtenue avec des billes de verre de 150μ de diamètre moyen, cette relation est indépendante de la maille du garnissage.

Il semble paradoxal de constater que cette diffusion axiale est plus importante avec garnissage que sans garnissage : celui-ci ne gène donc pas la mobilité des grains.

23 - DISCUSSION : INFLUENCE DU DIAMETRE DU LIT

Les expériences de PARK et coll. [5] pour le gaz et celles de KANG et OSBERG [2] pour le solide ont porté sur des colonnes de 10 et 5 cm de diamètre, donc trop petit pour qu'interviennent les phénomènes de circulation interne du type "gulf stream" en lit fluidisé classique (DAVIDSON [13]). Ce phénomène dû à des chemins préférentiels des bulles n'apparaît que dans des lits de gros diamètre (quelques décimètres). On ignore si le garnissage peut réduire ces circulations internes. CAPES [14] pense qu'il en est bien ainsi, mais il ne l'a pas vérifié. En fait, même dans des petites colonnes, PARK et coll. [5] ont bien observé un passage préférentiel par le centre.

3 - TRANSFERT DE CHALEUR

Les excellentes propriétés de transfert thermique des lits fluidisés viennent de la mobilité des grains. Celle-ci n'étant pas diminuée par la présence du garnissage, le lit garni devrait conserver ces bonnes qualités.

31 - TRANSFERT A LA PAROI

Dans ce domaine, la littérature ne fournit que des résultats qualitatifs provenant de la comparaison avec le lit fluidisé classique ou équipé d'un garnissage non grillagé [1, 16]. Comme le montre la figure (2,4), le coefficient de transfert de chaleur à la paroi est diminué 2 à 3 fois par ce type de garnissage et aux basses vitesses. Lorsque celles-ci sont plus fortes, grossièrement dix fois la vitesse minimale, ces coefficients de transfert sont du même ordre de grandeur, justement dans la zône intéressante où ce coefficient de transfert est maximal.

32 - TRANSFERT AXIAL

On peut envisager trois processus "en parallèle" susceptibles de participer au transfert thermique :

- convection par l'écoulement du gaz
- conduction par le garnissage
- convection par le mélangeage de solide

S'appuyant sur des résultats de la littérature, JAIN et CHEN [17] montrent que c'est ce dernier processus qui est prépondérant. Ceci a deux conséquences :

- le transfert de chaleur axial relève donc d'un processus diffusionnel, tout comme le mélangeage des grains.

- il doit y avoir une analogie type "analogie de Reynolds" entre la diffusion de la chaleur et celle des grains.

Donc, si on mesure une conductibilité thermique axiale du lit λ, on peut raisonnablement définir un coefficient de diffusion thermique :

$$D_t = \lambda/\rho C_p \qquad (2,6)$$

où ρC_p est la capacité calorifique volumique du lit. Celle-ci est égale à $\beta\ \rho_s\ C_{ps}$ en première approximation pour des lits fluidisés gaz-solide pas trop dilués. β est la fraction volumique occupée par le solide et $\rho_s C_{ps}$ la capacité calorifique volumique de ce dernier :

$$D_t = \lambda/\beta\rho_s C_{ps} \qquad (2,7)$$

De plus, D_t doit être identique à D_s , coefficient de diffusion axiale du solide. En fait, JAIN et CHEN ne trouvent qu'un accord médiocre (40 % de déviation standard) avec l'équation (2,5). Ils trouvent un meilleur accord avec une autre relation théorique que GABOR [18] a vérifiée avec des garnissages non grillagés :

$$D_t = 0{,}216.10^5\left[\rho_g(U-U_{mf})\right]^{5/3} \pm 15\ \% \qquad (2,8)$$

où D_t doit être exprimé en cm^2/s.

4 - AUTRES ASPECTS

41 - SEGREGATION DES PARTICULES

La ségrégation des particules ne se produit pas dans un lit fluidisé classique par suite de l'important rétro-mélangeage du solide. Ceci autorise l'emploi de plages granulométriques étendues. Il n'en vas pas de même dans un lit fluidisé garni, qui est plus apte à la ségrégation pour deux raisons :

- il a un grand rapport hauteur/diamètre

- l'expansion du lit étant plus grande, chaque particule rencontre moins de résistance à son voisinage immédiat.

42 - ENTRAINEMENT DES PARTICULES

La ségrégation des particules favorise l'entraînement des plus fines, dont la vitesse terminale est inférieure à la vitesse du gaz [20]. Cepen-

dant, dans un lit classique, la violence du bullage et l'éclatement des bulles projettent les grains au-dessus du lit. Les plus grosses retombent et cela crée, au-dessus du lit, une phase diluée. Une "zone de désengagement" est donc prévue, au-delà de laquelle on doit placer les cyclones. Cette zône de désengagement devient très réduite en présence d'un garnissage par suite de la diminution de la violence du bullage.

43 - ABRASION

Un lit fluidisé n'a pas de vertus abrasives très grandes : les vitesses de particules y sont assez faibles (quelques dizaines de cm/s au plus) et les obstacles immergés ne subissent pas d'abrasion (sauf s'ils sont mal placés, par exemple trop près des trous de grille...). Il n'y a donc pas d'abrasion du garnissage. Ainsi, McILHINNEY et OSBERG [21] ont pu fluidiser des grains inertes dans les interstices d'un garnissage recouvert d'une couche catalytique assez fragile sans que celle-ci ne soit altérée. De même, CAPES et McILHINNEY [22] fluidisant (avec transport de solide) du sable abrasif dans un garnissage en acier inox n'ont observé qu'une diminution de 0,04 % de la masse du garnissage au bout de 47 jours de fonctionnement.

44 - ATTRITION

On sait peu de choses sur l'attrition des particules. CAPES et McILHINNEY [22] ont observé une "attrition considérable" des billes de verre dans leur transport pneumatique, mais CAPES [14] pense qu'elle doit être de la même importance que dans un lit classique.

5 - CONCLUSION

La description d'un lit fluidisé classique est d'une grande complexité, elle fait intervenir de nombreux paramètres. On peut dire que le garnissage y apporte une grande simplification :

- il n'y a qu'une phase, par suite de l'homogénéisation du lit.
- les mélangeages du gaz et du solide obéissent à des modèles diffusionnels. On peut les caractériser par un seul paramètre : un coefficient de diffusion.
- le rôle du distributeur semble secondaire.

Il n'est donc pas étonnant qu'on dispose déjà de quelques corrélations entre les différents paramètres du lit (expansion, diffusion...). Ainsi (2,3), (2,5) et (2,8).

Le garnissage permet de corriger les défauts du lit fluidisé :

- il diminue le court-circuit du gaz
- il diminue le mélange du gaz
- il supprime le bouchonnage

- l'extrapolation devrait être plus simple (mais cela reste à vérifier).

A la différence d'autres "remèdes", le garnissage grillagé maintient deux des qualités essentielles du lit fluidisé : ses propriétés rhéologiques et de transfert thermique. En première analyse, il n'apporte pas d'inconvénients spécifiques. Seule, la tenue chimique et thermique du garnissage pourrait limiter son emploi. Il est à craindre que ce genre d'inquiétude ait été jusqu'à présent un des principaux motifs de l'absence de développement industriel du lit fluidisé garni.

BIBLIOGRAPHIE

[1] J.P. SUTHERLAND, G. VASSILATOS, H. KUBOTA et G.L. OSBERG
"The Effect of Packing on a fluidized bed"
A.I.Ch.E.Jl 9 (1963), 437

[2] W.K. KANG et G.L. OSBERG
"Longitudinal Particle Mixing in a Screen-Packed Gas-Solid Fluidized Bed"
Can. Jl. Chem. Eng. 44 (1966) 142

[3] W.K. KANG, J.P. SUTHERLAND et G.L. OSBERG
"Pressure fluctuation in a fluidized bed with and without screen cylindrical packings"
I & EC Fund. 6 (1967), 499

[4] W.H. PARK, W.K. KANG, C.E. CAPES et G.L. OSBERG
"The properties of bubbles in fluidized beds of conducting particles as measured by an electroresistivity probe"
Chem. Eng. Sci. 24 (1969), 851

[5] W.H. PARK, C.E. CAPES et G.L. OSBERG
"Axial dispersion in fluidised bed containing cylindrical screen packings"
I. Chem. Eng. Symp. Ser. 30 (1968), 140

[6] J.F. RICHARDSON et W.K. ZAKI
"Sedimentation and Fluidisation : Part. I"
Trans. Inst. Chem. Engr. 32 (1954), 35

[7] C.E. CAPES et A.E. McILHINNEY
"The pseudo-particulate expansion of screen-packed gas-fluidized beds"
A.I.Ch.E.Jl 14 (1968), 917

[8] D. KUNII et O. LEVENSPIEL
"Fluidization Engineering"
John Wiley (1969)

[9] O. LEVENSPIEL
"Mixing flow patterns"
Conference au Centre de Cinétique du CNRS - 17 Septembre 1973

[10] B.H. CHEN et G.L. OSBERG
"Gas mixing in fluidized beds containing screen packings"
Can. Jl. Chem. Eng. 45 (1967), 90

[11] T.J. HANRATTY, G. LATINEN et R.H. WILHELM
"Turbulent diffusion in Particulately Fluidized beds of Particles"
A.I.Ch.E.Jl 2 (1956), 372

[12] T. ISHII et G.L. OSBERG
"Effect of packing on the catalytic isomerization of cyclopropane in fixed and fluidized beds"
A.I.Ch.E.Jl 11 (1965), 279

[13] J.M.D. MERRY et J.F. DAVIDSON
"Gulf Stream circulation in shalhow fluidised bed"
Trans. Inst. Chem. Engrs. 51 (1973), 361
Congrès International, Toulouse, Octobre 1973, p.196

[14] C.E. CAPES
Communication personnelle

[16] C.E. CAPES, J.P. SUTHERLAND et A.E. McILHINNEY
"An experimental study of the effect of dump packing on wall to fluidized bed heat transfer"
Can. J. Chem. Eng. 46 (1968) 473

[17] S.C. JAIN et B.H. CHEN
"Heat transfer in a screen-packed fluidized bed"
A.I.Ch.E. Symp. Ser. 116 (1972) 97

[18] J.D. GABOR
"Fluidized-packed beds"
Chem. Eng. Prog. Symp. Ser. 62, 67, 32 (1966)

"Lateral transport in a fluidized-packed bed"
A.I.Ch.E.Jl, 11 (1965), 127

[19] J.P. SUTHERLAND et K.Y. WONG
"Some segregation effects in packed-fluidised beds"
Can. J. Chem. Eng. 42 (1964) 163

[20] T.A. TWEDDLE, C.E. CAPES et G.L. OSBERG
"Effect of screen packing on entrainment from fluidized beds"
I & EC Proc. Des. Devel. 9 (1970) 85

K. KATO et U. ITO
"The elutration rate from a packed fluidized bed"
J. Chem. Eng. Jap. 5 (1972), 144

[21] A.E. McILHINNEY et G.L. OSBERG
"Silver Sprayed Cylindrical Mesh Packing in a fluidized bed"
Can. J. Chem. Eng. 42 (1964) 232

[22] C.E. CAPES et A.E. McILHINNEY
"Method and apparatus for conveying particulate material upwardly in a gas stream"
Canadian Patent n° 914728 (1971)

2ème Partie

ETUDE EXPERIMENTALE

PLAN DU CHAPITRE 3

1 - OBJET DE NOTRE RECHERCHE EXPERIMENTALE

2 - LES DEUX COLONNES DE FLUIDISATION

21 - LA COLONNE D'ETUDE EN BATCH
22 - LA COLONNE D'ETUDE A CONTRE-COURANT
221 - Exigences de la conception
222 - Conception de l'appareillage
223 - Utilisation

3 - MATERIAUX UTILISES

31 - GAZ
32 - GARNISSAGE
33 - GRAINS

4 - MESURES

41 - PRESSIONS
42 - DEBIT DE GAZ
43 - DEBIT DE SOLIDE
44 - RETENTION

5 - DEROULEMENT DES MESURES

CHAPITRE 3 MONTAGE ET APPAREILLAGE EXPERIMENTAL

1 - OBJET DE NOTRE RECHERCHE EXPERIMENTALE

Nous avons limité notre recherche expérimentale à l'étude de l'aspect hydrodynamique du lit fluidisé garni, ce qui est la seule façon d'aborder une étude éventuellement plus complète. Par rapport aux études déjà faites sur ce sujet, par les Canadiens en particulier, nous essaierons d'approfondir certains aspects fondamentaux. Par exemple, il est surprenant de voir qu'on ne sait pour ainsi dire rien sur la vitesse minimale de fluidisation en présence d'un garnissage. Cette donnée est pourtant importante puisqu'elle est généralement prise comme référence pour mesurer "le degré" de la fluidisation.

De plus, les travaux des chercheurs canadiens ont porté sur des colonnes assez petites : 2 mètres de longueur et 3 à 7,5 cm de diamètre (exceptionnellement 30 cm). Comme on envisage des applications au niveau industriel, il est bon d'avoir des dimensions plus importantes, un appareillage semi-pilote et des lits de grands rapports hauteur/diamètre. D'un point de vue plus fondamental, on ignore comment agit le garnissage : Pourquoi il y-a-t-il homogénéisation ? Nous chercherons à éclaircir ce point.

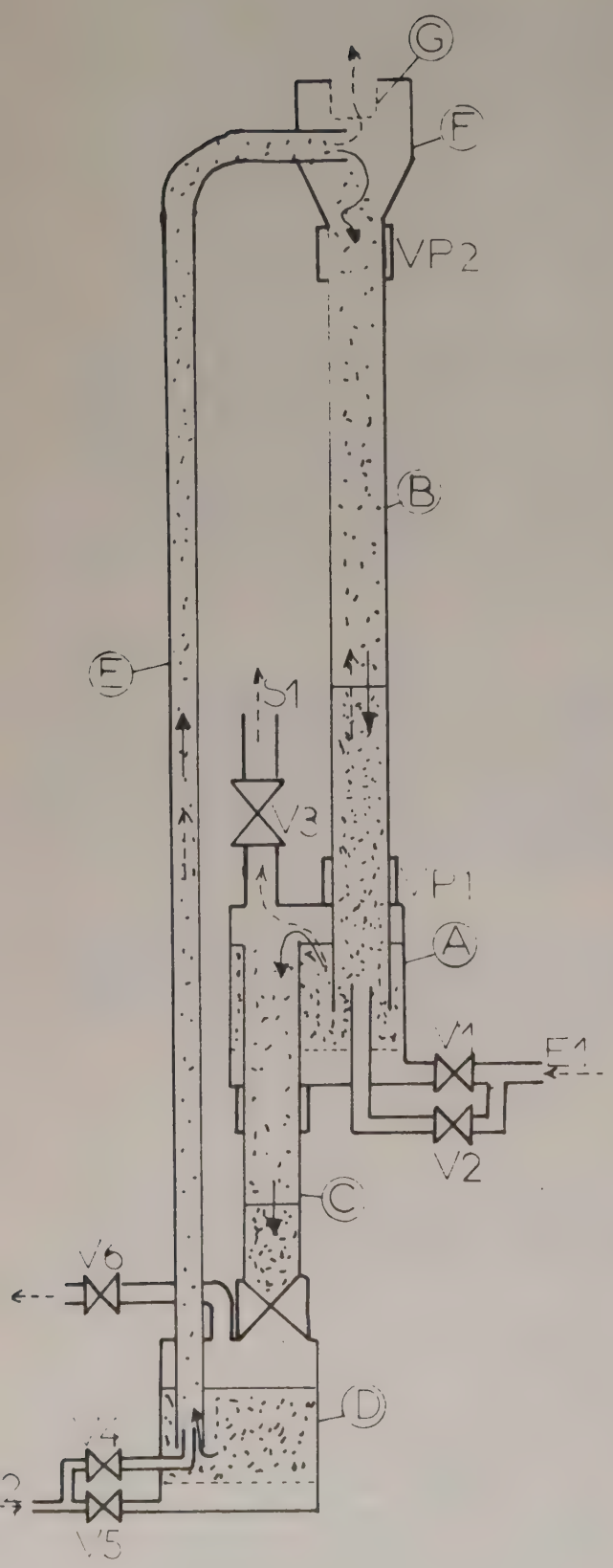
Enfin, rappelons ici que dans ce laboratoire, l'étude d'écoulements diphasiques à contre-courant a été réalisée par LOUTATY et PERRUT en liquide-liquide [1] et ABERGEL en gaz-liquide [2]. Il est vraisemblable que les analogies ne doivent pas manquer.

2 - LES DEUX COLONNES DE FLUIDISATION

Les mesures dans le lit fluidisé sans écoulement de solide, que nous appellerons lit stagnant, sont plus simples et il est préférable de les réaliser dans un appareillage spécial.

21 - LA COLONNE n°1 D'ETUDE DU LIT STAGNANT

Un schéma de principe en est donné à la figure 3.1. La colonne est en résine acrylique transparente et elle a un diamètre intérieur de 92 mm et une longueur de 4,50 m. Pour assurer une distribution du gaz aussi homogène que possible, une "zone calmante" de 10 cm de hauteur garnie de billes de verre de 10 et 5 mm de diamètre est placée sous la plaque de distribution. Celle-ci est soit un carton poreux ayant une perte de charge négligeable, soit une plaque métallique perforée de forte perte de charge. En tête de colonne, une "zone de désengagement" de 30 cm de diamètre permet de séparer les particules éventuellement entraînées. Celles-ci sont recyclées à la base de la



Circulation du solide

Circulation du gaz

Croquis 3A

Schéma de l'installation n°2

colonne par l'intermédiaire d'un sas. Une grille de 1 cm de maille soutient le garnissage à 1,5 cm au dessus du distributeur.

22 - LA COLONNE n°2 D'ETUDE A CONTRE-COURANT

221 - Exigences de la conception

La conception d'un appareillage doit tenir compte d'un certain nombre de contraintes :

- L'appareil doit permettre les mesures de pressions, débits et rétentions les plus simples possible. La mesure du débit de solide, a priori n'est pas aisée.

- On doit pouvoir travailler dans la plus large gamme de débits, donc avoir un appareil assez souple.

- Nous désirons utiliser une colonne de diamètre de 92 mm, comme pour la colonne 1. Ceci impose des débits de solide tels qu'on ne peut concevoir la colonne sans un recyclage du solide.

- Enfin et surtout, nous désirons pouvoir stabiliser un lit lâche ou un lit dense à notre gré dans le même appareil. La plupart des auteurs ayant travaillé sur le contre-courant fluide-solide ont été contraints d'utiliser deux appareils, où le débit de solide était régulé soit en tête de colonne ("lit libre"), soit à la base ("lit retenu par le bas") [3].

222 - Conception

L'appareil que nous avons utilisé est représenté sur le croquis 3A et la figure 3.2. Son principe de fonctionnement est le suivant : dans le bac A, le niveau du lit fluidisé est maintenu constant grâce à une surverse. En alimentant le lit en air par l'entrée E1 avec un débit constant, on peut pressuriser le bac en fermant progressivement la vanne V3. La colonne proprement dite B plonge à sa base dans le lit fluidisé et lorsque celui ci est maintenu sous pression, il s'établit un équilibre "hydrostatique" qui tend à maintenir dans la colonne un lit fluidisé dense. Le niveau de ce dernier peut être réglé par action sur la vanne V3. Le sas C permet de soutirer le solide sans dépressuriser les bacs A et D. Ce dernier est aéré par l'entrée E2 et alimente

la ligne de transport E. Celle-ci débouche tangentiellement dans le cyclone F d'où l'air est évacué à l'atmosphère à travers le filtre G tandis que le solide retombe en tête de colonne. Pour plus de détails, le lecteur se reportera à l'annexe 3.1.

223 - Utilisation

Le réglage du débit de solide se fait par action sur la vitesse de rotation du surpresseur alimentant E2 et sur V4, V5 et V6. Le système d'alimentation du transport pneumatique par lit fluidisé a déjà fait ses preuves de souplesse et de commodité dans des études précédentes [4,5]. Le débit de gaz passant dans la colonne B est réglé par action sur V1 et V2 et sur le débit d'air entrant en E1. On stabilise un lit lâche en laissant V3 à pleine ouverture, et un lit dense en fermant progressivement V3 de manière à ajuster le niveau du lit dense à la tête de la colonne. Le maniement de l'appareil est assez simple, mais en raison du nombre de vannes, il nécessite l'acquisition d'une certaine pratique.

3 - MATERIAUX

31 - GAZ

Le seul gaz utilisé tant pour la fluidisation que pour le transport est de l'air généralement ambiant, ou exceptionnellement prélevé sur un réseau à 7 bars, donc plus sec.

32 - GARNISSAGE

Le garnissage est constitué par l'empilement au hasard d'anneaux de grillage. On a choisi leurs dimensions selon les critères suivants :

- leur diamètre doit être égal à leur hauteur, de longueur raisonnable, de manière à pouvoir placer quatre anneaux dans le diamètre de la colonne. La dimension finalement choisie, 2 cm, correspond à la dimension moyenne des anneaux utilisés par les chercheurs canadiens (3/4 pouce).

- Sa maille doit être égale à 10 fois le diamètre des grains, ceci pour la première poudre que nous avons utilisée (Alumine 1). Finalement, nous avons choisi une maille de 1,04 mm.

- Le fil composant le grillage est en acier inoxydable et son diamètre est de 0,5 mm.

- Les anneaux sont simplement roulés et non soudés.

En mesurant la masse de garnissage dans nos colonnes, nous avons déduit que sa porosité est de 0,975 et sa surface spécifique de 1,48 m^2 par mètre de colonne.

33 - NATURE DU SOLIDE

Nous avons utilisé 7 types de poudres, dont les propriétés sont rassemblées dans le tableau 3.1 :

- Les courbes granulométriques ont été déterminées par tamisage (figure 5.3)
- Le diamètre moyen $\overline{d_p}$ est calculé comme la moyenne harmonique de cette répartition [6].
- La densité des grains a été mesurée soit dans un picnomètre ordinaire à eau, soit dans un picnomètre à mercure (figure 5.4).
- La vitesse minimale a été déterminée en portant la perte de charge en fonction de la vitesse du gaz à débits décroissants suivant la méthode de PATUREAUX [7] soit dans son appareil de 350 mm de diamètre, soit dans notre colonne n° 1 non garnie.
- La vitesse terminale de chute libre est calculée selon la méthode décrite par YOUSFI [5], qui est d'une bonne précision.
- Le facteur de forme est évalué à partir de la pente de la courbe de perte de charge du lit fixe [8].

Matériaux	Diamètre moyen $\overline{d_p}$ en μ	Densité ρ_s g/cm^3	Vitesse minimale U_{mf} cm/s	Vitesse terminale U_t cm/s	Porosité minimale ε_{mf}	Facteur de forme ϕ_s
Alumine 1	150	1,27	0,8	58,0	0,514	0,84
Alumine 2	370	1,21	3,2	173	0,424	0,82
Catalyseur de crackage	50	1,19	0,22	8,87	0,273	0,60
Billes de verre	58	2,37	0,35	23,8	0,365	1
Sable de cristallerie	235	2,65	7,7	179	0,395	0,64
Polystyrène sulfoné	424	1,05	4,4	177	0,326	1
Abrasif végétal	362	1,38	7,5	185	0,500	0,41

Tableau 3.1 - Caractéristiques des grains utilisés

On remarque que trois poudres (Alumine 2, Polystyrène et abrasif végétal) n'ont pas un rapport diamètre de maille/diamètre du grain supérieur à trois, contrairement aux recommandations de certains auteurs [9].

Pour limiter les effets électrostatiques, le polystèrene a été sulfoné superficiellement selon une méthode bien connue dans le laboratoire [5].

Les granulométries pouvaient évoluer au cours des mesures, vers les gros diamètres dans la colonne 1 (en dépit du filtre de sortie) et vers les petits diamètres dans la colonne 2 (à cause de l'attrition dans le transport pneumatique).

Ajoutons que seuls le sable et l'abrasif végétal ont été utilisés à contre-courant.

4 - MESURES

Rappelons que les mesures d'hydrodynamique concernent le gradient de pression, les débits de solide et de gaz et la rétention du solide.

41 - PRESSIONS

Respectivement 9 et 6 prises de pression (figure 5.5.) ont été disposées le long des colonnes 1 et 2. Les pressions correspondantes sont mesurées par des tubes en U contenant de l'eau ou du mercure équipés de suiveurs de niveau. Ces derniers fournissent une lecture simple,rapide et précise de la dénivellation et permettent également d'enregistrer les fluctuations (voir Annexe 3.1) et d'en déduire une valeur moyenne.

42 - DEBIT DE GAZ

Dans la colonne n° 1, le débit de gaz est mesuré le plus souvent à l'aide de diaphragmes placés en amont, de diamètre compris entre 1 et 25 mm. Les plus gros orifices sont calculés selon la norme AFNOR X10-101, les autres étant étalonnés (annexe 3.1). Lorsque les débits sont trop faibles, on relie la sortie de la colonne à un compteur volumétrique et on mesure le volume de gaz passant durant un temps donné .

Dans la colonne n° 2, le débit de gaz doit être calculé à partir d'un bilan volumique :

$$\begin{bmatrix}\text{Débit de gaz}\\ \text{passant dans}\\ \text{la colonne}\end{bmatrix} = \begin{bmatrix}\text{Débit de gaz}\\ \text{entrant}\\ \text{en E1}\end{bmatrix} - \begin{bmatrix}\text{Débit de gaz}\\ \text{sortant}\\ \text{en S1}\end{bmatrix} + \begin{bmatrix}\text{Débit}\\ \text{du}\\ \text{solide}\end{bmatrix}$$

On est donc contraint à mesurer 2 débits gazeux, en E1 et S1, ce qui est réalisé à l'aide de diaphragmes étalonnés l'un par l'autre (annexe 3.1) pour réduire l'erreur lorsque les débits en E1 et S1 sont voisins. L'opération est répétée 4 fois.

43 - DEBIT DU SOLIDE

Cette mesure n'est nécessaire que dans la colonne n° 2. Elle se fait, dans le sas, en mesurant la hauteur du solide et le temps de remplissage, et on répète l'opération 5 fois. Lorsqu'on travaille avec un lit dense dans la colonne B, le bouchonnage(léger) provoque des irregularités sur le débit de solide dans le sas C, ce qui rend la mesure très imprécise (20 à 30%).

44 - RETENTION DU SOLIDE

Dans la colonne n° 1, connaissant la masse M du solide introduit, on peut calculer la rétention β à partir de la hauteur H du lit :

$$\beta = M/\rho_s \Omega H$$

où ρ_s est la masse volumique du solide et Ω la section de la colonne. Comme le niveau du lit est assez net (sauf aux fortes vitesses de gaz), H peut être mesuré à l'aide d'une règle graduée avec une bonne précision quand il n'y a pas trop de fluctuations. Dans certains cas, il faut déterminer H à partir du profil de pression dans la colonne (voir figure 4.4).

Dans l'installation n° 2, la rétention est mesurée en fermant simultanément et rapidement les deux vannes pneumatiques VP1 et VP2, puis en vibrant énergiquement la colonne pour bien tasser le solide emprisonné entre les deux vannes et enfin, en mesurant la hauteur du solide.

5 - DEROULEMENT DES MESURES

Dans les deux appareils, on s'assure que le régime est permanent grâce à l'enregistrement de la pression différentielle du débitmètre d'entrée.

51 - COLONNE n° 1

On fait varier le débit de gaz depuis les débits les plus faibles correspondant à des pressions mesurables, jusqu'aux plus forts débits, tels que l'on puisse encore recycler les grains entraînés.

52 - COLONNE n° 2

On fait plusieurs séries de mesures à débit de solide constant. Dans chaque série, on donne successivement plusieurs valeurs au débit gazeux,

en lit lâche et en lit dense. Pour maintenir constant le débit de solide, on fixe le réglage de V4, V5 et V6 pour chaque série. En fait, il y a de légères variations en raison des différences de niveau du lit fluidisé dans le bac D.

BIBLIOGRAPHIE

[1] R. LOUTATY
"Hydrodynamique et transfert de chaleur dans les dispersions liquide-liquide"
Thèse de Doctorat, Université de Nancy, 1968

M. PERRUT
"Extraction liquide-liquide - Hydrodynamique et transfert de matière dans les colonnes à pulvérisation"
Thèse de Doctorat, Université Nancy I, 1972

[2] A. ABERGEL
"Hydrodynamique et transfert de matière dans les colonnes à pulvérisation gaz-liquide"
Thèse de Doctorat, Université Nancy I, 1974

[3] T.S. MERTES et H.B. RHODES
"Liquid-particle behaviour"
C.E.P. 51 (1955), 513

B.G. PRICE, L. LAPIDUS et J.C. ELGIN
"Mechanics of vertical moving fluidized systems
II - Applications to countercurrent operation"
A.I.Ch.E.Jl 5 (1959), 93

F.A. ZENZ
"Two phase fluid-solid flow"
I & EC 41 (1949), 2801

[4] M.A. SOLAR BAEZA
"Etude du transport pneumatique vertical à forte concentration de solide"
Thèse Docteur-Ingénieur, Université Nancy I, 1970

H. de LASA
"Etude des phénomènes diffusionnels dans un réacteur à transport pneumatique"
Thèse Docteur-Ingénieur, Université Nancy I, 1971

[5] Y. YOUSFI
"Contribution à l'étude d'un réacteur à transport pneumatique Hydrodynamique et transfert de chaleur"
Thèse de Doctorat, Université Nancy I, 1973

[6] F. VERGNES
"Statistiques des particules"
Cours ENSIC, Nancy 1966

[7] T. PATUREAUX
"Contribution à l'étude du mouvement des particules d'un lit fluidisé gaz-solide"
Thèse Docteur-Ingénieur, Université Nancy I, 1972

[8] P. LE GOFF et R. BEN AIM
"Mecanique des milieux poreux et dispersés
1ère partie : lits fixes"
Cours ENSIC - Nancy 1970

[9] C.E. CAPES et A.E. McILHINNEY
"The pseudo-particulate expansion of screen-packed gas-fluidized beds"
A.I.Ch.E.Jl 14 (1968), 17

PLAN DU CHAPITRE 4

1 - NOTATIONS, DEFINITIONS et ASPECTS THEORIQUES

11 - GRANDEURS MESUREES, DEFINITIONS
12 - RELATION U_r EN FONCTION DE β
13 - INTERPRETATION DES EXPERIENCES DE ZENZ
131 - Lit lâche
132 - Lit dense
133 - Engorgement

14 - INTERVENTION DU GARNISSAGE
141 - Bibliographie
142 - Mise en équation
143 - Mise sous forme adimensionnelle

2 - ETUDE PRELIMINAIRE

21 - RESULTATS
22 - DISCUSSION - COMPARAISON AVEC D'AUTRES RESULTATS

3 - EXPANSION DU LIT

31 - SANS ECOULEMENT DE SOLIDE
311 - Aspect du lit
312 - Loi d'expansion
313 - Comparaison avec la loi de CAPES et McILHINNEY
32 - AVEC CONTRE-COURANT GAZ-SOLIDE

4 - LIT LACHE, LIT DENSE, ENGORGEMENT

5 - PERTE DE CHARGE

51 - SANS ECOULEMENT DE SOLIDE
52 - AVEC ECOULEMENT DE SOLIDE

6 - FRICTIONS GRAINS-GARNISSAGE

61 - AUX FAIBLES CONCENTRATIONS
62 - AUX FORTES CONCENTRATIONS
621 - Vitesse minimale de fluidisation
622 - Interprétation
623 - Hystérésis

7 - CONCLUSION

CHAPITRE 4 ETUDE EXPERIMENTALE

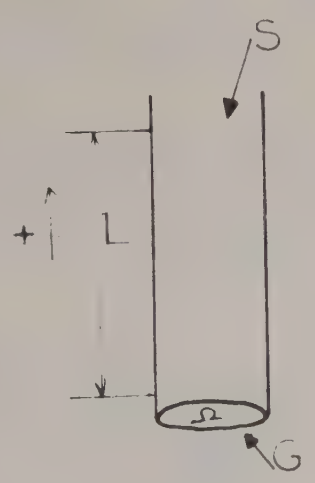
Avant d'aborder l'étude expérimentale proprement dite, il convient de chercher les grandeurs à mesurer et d'essayer de prévoir comme elles doivent être corrélées. Pour cela, nous nous inspirons de l'ouvrage de WALLIS [1] qui aborde de manière simple et rigoureuse l'étude des "écoulements diphasiques unidimensionnels" auxquels appartient évidemment le lit fluidisé garni, avec ou sans écoulement de solide.

Il est bon de chercher à savoir quelle est l'action du garnissage sur l'expansion du lit et sur la perte de charge, car ces deux données sont importantes lors de la conception d'une unité industrielle. Nos résultats seront analysés par application de la méthode de WALLIS et comparés à ceux des Canadiens. Dans la mesure du possible, nous essayerons de comprendre comment intervient le garnissage, quelle est son action, quelles sont ses interactions mécaniques avec le gaz et avec les grains .

1 - NOTATIONS, DEFINITIONS ET ASPECTS THEORIQUES

11 - DEFINITIONS

On se place en régime permanent. Appelons Ω et L la section et la longueur d'un élément de colonne (croquis 4A) Si nous mesurons une différence de pression ΔP, la grandeur intéressante est $\Delta P/L$ le gradient de pression.



Croquis 4A

S et G sont les débits volumiques globaux du solide et du fluide dans l'élément de colonne, pris positifs dans le sens ascendant. Les grandeurs spécifiques correspondant à ces débits sont les "vitesses en fût vide"

$$U = G/\Omega \qquad (4,1)$$

$$W = S/\Omega \qquad (4,2)$$

Appelons β et ε les fractions volumiques occupées respectivement par le solide et le gaz. On a évidemment :

$$\beta + \varepsilon = 1 \qquad (4,3)$$

On peut dire maintenant que les grandeurs :

$$U_g = U/\varepsilon \qquad (4,4)$$

et

$$U_s = W/\beta \qquad (4,5)$$

représentent respectivement les moyennes des vitesses vraies du gaz et des grains. Nous dirons plus simplement : "vitesse du solide" et "vitesse du gaz".

Les interactions mécaniques entre les deux phases doivent dépendre, entre autres, de leur mouvement relatif . Nous sommes donc amenés à définir la vitesse relative :

$$U_r = U_s + U_g \qquad (4,6)$$

12 - RELATIONS ENTRE Ur et β

De nombreux auteurs présupposent sans démonstration l'existence d'une relation biunivoque entre U_r et β.

L'intérêt d'une telle relation réside dans l'extrapolation : la courbe U_r en fonction de β peut être déterminée dans un lit "stagnant" (W = 0), cas où les mesures et l'appareillage sont très simples. Comme on peut le voir à l'annexe 4.1, une condition suffisante pour qu'une telle relation existe est que deux hypothèses soient satisfaites :

- système homogène
- pas de frictions aux parois.

Les systèmes liquide-solide remplissent bien cette condition : STRUVE [3], LAPIDUS et ELGIN [2, 4, 5] et MERTES et RHODES [6] l'ont confirmé expérimentalement. La loi liant U_r à β peut être calculée ou empirique : BARNEA et coll [7] font le point sur cette question. La loi la plus utilisée en liquide-solide est celle de RICHARDSON et ZAKI [8].

$$U_r = U_t \varepsilon^n \qquad (4,7)$$

Les systèmes liquide-liquide et, dans certains cas, gaz-solide, satisfont également à cette équation .

En gaz-solide homogène (transport pneumatique), l'existence de cette relation a souvent été supposée [8, 9, 10], mais jamais vérifiée. De ce fait, la plupart des corrélations font apparaître β, U_r et U_s ou U_f [11]. De même CAPES [12], avec cette hypothèse, ne parvient pas à rendre compte de ses résultats expérimentaux en lit fluidisé garni à co-courant.

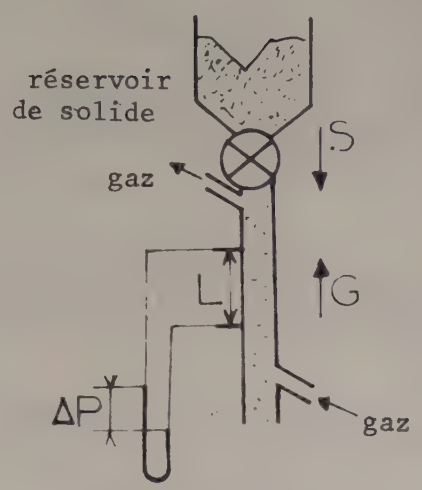
Lorsqu'une relation existe entre U_r et β, le modèle du "flux de dérive", exposé à l'annexe 4.1, permet de prévoir le comportement d'un système diphasique. Dans le cas du contre-courant, on doit avoir deux points de fonctionnement, l'un à faible concentration, dit lit lâche, l'autre à plus grande concentration, dit lit dense. Ces deux points sont confondus à l'engorgement.

13 - INTERPRETATION DES EXPERIENCES DE ZENZ

Des expériences sur le contre-courant gaz-solide sont rapportées par ZENZ [13]. Elles montrent clairement l'existence du "lit lâche" et du "lit dense".

131 - Lit lâche

A l'aide du système schématisé sur le croquis 4B, on laisse s'écouler"en pluie" un débit de solide S à contre-courant d'un débit de gaz G. On peut raisonnablement admettre que le système est fluidisé au sens d'ELGIN (voir Annexe 4.1). $\Delta P/L$ est alors proportionnel à la concentration du solide.

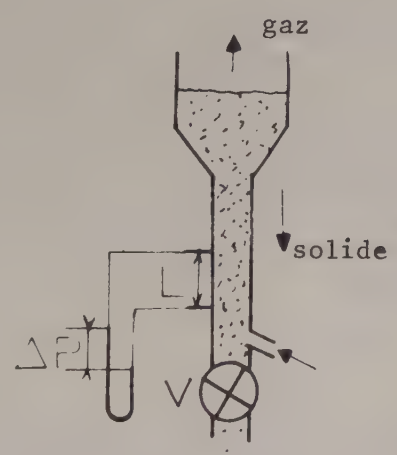


Croquis 4B

Pour G = 0, on enregistre une certaine concentration $(\Delta P/L)_o$. Pour G croissant, la concentration en grains croît et par conséquent leur vitesse décroît. Tant que G reste faible, la suspension reste homogène.

132 - Lit dense

L'appareil schématisé sur le croquis 4C permet d'imposer un débit descendant de solide grâce à une vanne rotative V. Lorsque le débit de gaz est faible, le solide ne peut pas être fluidisé : son poids est équilibré partiellement par la friction avec le gaz et partiellement par la réaction des parois. La différence de pression ne représente pas la concentration du solide. La loi de perte de charge est du type KOZENY-CARMAN [14].



Croquis 4C

Lorsque la vitesse relative des deux phases devient supérieure à la vitesse de fluidisation, on obtient un lit fluidisé à contre-courant. Ce dernier correspond au lit dense : en faisant croître le débit de gaz, la concentration du solide décroît et donc $\Delta P/L$ diminue.

133 - Engorgement

En superposant les deux appareils précédents (croquis 4D), on peut montrer que dans les mêmes conditions d'alimentation (S et G fixés), le système fonctionne soit en lit lâche soit en lit dense. Certains auteurs parlent de "lit tombant librement" et de "lit retenu par le bas".

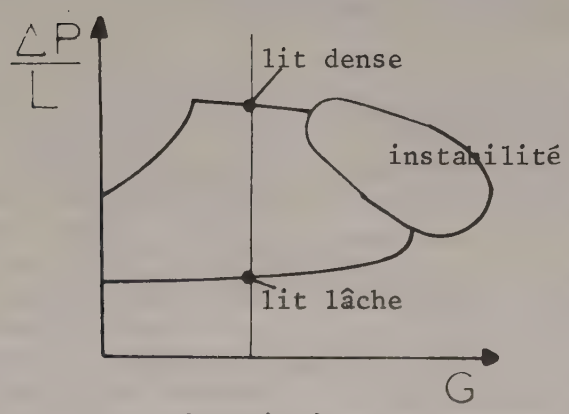
Croquis 4D

Le caractère agrégatif de l'émulsion gaz-solide intervient ici sous forme de bouchonnage ("slugging") en lit dense et de "choking" en lit lâche. Improprement traduit par "engorgement", le "choking" est dû à l'instabilité de

l'émulsion gaz-solide et il apparaît aussi à co-courant (Transport pneumatique). Le terme d'"engorgement" doit être réservé pour désigner la limite d'existence d'un quelconque système diphasique à contre-courant indépendamment de son caractère agrégatif. Vu les interprétations qui ont été données du "choking" [12, 18], il vaut mieux traduire ce terme par "instabilité", ou "avalanche", ou bien encore "limite supérieure du bouchonnage".

Ce phénomène est suffisamment gênant pour rendre difficile, voire impossible, une observation de l'engorgement. Diverses études sur ce sujet (voir à l'annexe 4.2) paraissent contradictoires.

ZENZ [18] unifie dans un même diagramme le lit lâche et le lit dense (croquis 4E).



Croquis 4E

14 - INTERVENTION DU GARNISSAGE

141 - Bibliographie

Peu de travaux ont été publiés sur le contre-courant gaz-solide dans un garnissage. ZENZ [13] a étudié le cas d'un garnissage sphérique, peu favorable à une bonne fluidisation. Mais il a observé l'engorgement. MASUDOV et coll. [15] ont plus spécialement étudié ce dernier aspect, en faisant des analogies avec l'écoulement gaz-liquide. En utilisant plusieurs types de garnissage, ils mettent en évidence la résistance de ces derniers à l'écoulement du solide.

142 - Mise en équation

Nous supposons que dans l'unité de volume du système, chaque phase n'est soumise qu'à certaines forces : son poids, les forces de frictions gaz-solide (F_{gs}), gaz-paroi et garnissage (F_{gp}) et solide-paroi et garnissage (F_{sp}). Les bilans s'écrivent respectivement pour le gaz et le solide :

$$0 = -\rho_g g - \frac{dp}{dz} + \frac{F_{gs}}{\varepsilon} + \frac{F_{gp}}{\varepsilon} \qquad (4,8)$$

$$0 = -\rho_s g - \frac{dp}{dz} + \frac{F_{sg}}{\beta} + \frac{F_{sp}}{\beta} \qquad (4,9)$$

En éliminant $F_{gs} = -F_{sg}$, il vient :

$$-\frac{dp}{dz} + \rho_g g = \beta(\rho_s - \rho_g)g - F_{sp} - F_{gp} \qquad (4,10)$$

Cette équation signifie que la perte de charge n'équilibre pas le poids du lit par unité de section.

F_{gp} est souvent négligeable, pour peu que la vitesse du gaz soit assez faible. Une autre combinaison de (4,8) et (4,9) nous donne alors :

$$F_{gs} = \varepsilon\beta(\rho_s - \rho_g)g - \varepsilon F_{sp} \qquad (4,11)$$

Comme dans l'annexe 4.1, on peut dire ici que F_{gs} n'est fonction que de β et la vitesse relative des deux phases. Quant au frottement solide-garnissage, on peut penser qu'il ne dépend que de ε et de la vitesse du solide. Il doit donc exister une relation.

U_r fonction de β et W

L'introduction de ces termes de frottement à la paroi et au garnissage empêche la vitesse relative de jouer le rôle de "variable clef", comme en liquide-solide. Il est nécessaire de prendre en compte la variable W.

143 - Mise sous forme adimensionnelle

Nous posons

$$\beta_g = \frac{-\frac{dp}{dz} + \rho_g g + F_{gp}}{(\rho_s - \rho_g)g} \qquad (4,12)$$

$$\beta_p = \frac{F_{sp}}{(\rho_s - \rho_g)g} \qquad (4,13)$$

On peut alors ré-écrire l'équation (4,10) sous la forme :

$$\beta = \beta_g + \beta_p \qquad (4,14)$$

Cette équation signifie simplement que β_g/β et β_p/β sont respectivement la contribution du gaz et du garnissage à l'équilibre du poids du solide. Nos résultats seront interprétés en ces termes.

2 - ETUDE PRELIMINAIRE

Comme nous l'avons vu au paragraphe précédent, nous avons besoin de connaître F_{gp}, la force de friction volumique du gaz sur le garnissage et la paroi du lit fluidisé. Nous pensons que pour la même vitesse interstitielle du gaz, cette friction est la même que dans le garnissage seul :

F_{gp} fonction de U_g seulement

Nous avons donc mesuré $\Delta P/L$, le gradient de pression, dans la colonne garnie non chargé de poudre, en faisant varier les vitesses de gaz.

21 - RESULTATS

Portées à la figure 4.1, nos données expérimentales sont bien représentées par la relation :

$$\Delta P/L = 3{,}17.10^{-3}\ U_g^{1{,}66} \text{ en unités CGS} \qquad (4{,}15)$$

Ces résultats couvrent la plage 0,2 m/s < U_g < 3 m/s. Pour U_g < 40cm/s, la dispersion des points est assez élevée ; ceci est dû à la faiblesse des pressions mesurées, eu égard à la sensibilité de nos manomètres ; mais pour U_g > 40 cm/s, la régression logarithmique donne un coefficient de corrélation satisfaisant de 0,9995. Pour une même vitesse de gaz, le garnissage seul crée une chute de pression 300 fois plus grande que la colonne vide (figure 4.2).

22 - COMPARAISON AVEC D'AUTRES RESULTATS

Au cours d'études similaires, CHEN [16] a obtenu des résultats sensiblement différents des nôtres. Avec des anneaux analogues aux nôtres (1,25 x 1,25, maille 1,17 mm, fil de 0,62 mm) et pour des vitesses du même ordre, il propose 1,25 comme exposant de U_g et obtient des pertes de charge grossièrement 40 fois plus grandes que les nôtres. Par contre CAPES [12] propose la loi suivante :

$$\Delta P/L = 6{,}57.10^{-4}\ U_g^{1{,}84} \text{ (unités CGS)}$$

avec des anneaux de 2 x 2 cm ayant une maille de 3,3 mm. Ce résultat est 5 fois plus faible que le nôtre (à cause probablement de la différence importante de maille) et s'en rapproche plus que CHEN.

La différence avec les résultats de ce dernier peut avoir plusieurs explications :

- le rôle de la dimension des anneaux est très important
- le tissage du grillage peut jouer un rôle important en induisant une rugosité du garnissage.
- Il n'est pas impossible que dans notre cas, il y ait un fort écoulement du gaz à la paroi, où, comme on le sait bien bien, la porosité est plus grande qu'au centre. Signalons ici que le rapport dimension de l'anneau/diamètre de la colonne est de 0,165 pour CHEN et 0,217 pour nous.

3 - EXPANSION DU LIT

31 - LIT STAGNANT

311 - Aspect du lit

Notre observation visuelle corrobore celles de chercheurs canadiens : aux faibles vitesses de gaz, on voit effectivement des bulles bien formées, de diamètre à peu près uniforme. Avec certains grains, nous avons remar-

qué, dans une gamme de vitesses de gaz assez réduite, des montées des bulles par paquets. En même temps, le lit "pulsait" avec une période parfois très régulière. Un enregistrement de la pression en point du lit montrait la même oscillation périodique.

Exemple : avec l'alumine 1, pour des vitesses comprises entre 2 et 2,5 cm/s, les pulsations de pression avaient une amplitude de 30 % autour de la moyenne et une période de 50 s (figure 4.3). Ayant observé des lits fluidisés classiques pistonnants dans notre colonne 1 (voir annexe 4.3), nous avons constaté une certaine similitude : même aspect périodique, même "effondrement" du lit libérant les bulles de gaz. Nous pensons donc que dans notre lit fluidisé garni, nous avons affaire à du bouchonnage. Mais ce dernier est considérablement atténué, "adouci" : il ne secoue pas la colonne, sa période est plus grande (en lit classique pistonnant, la période ne dépasse pas quelques secondes) et il n'a lieu que dans une gamme de vitesses de gaz assez réduites.

Aux fortes vitesses, nous n'observons pas de bulles à proprement parler, mais des zônes où la concentration en solide est plus faible. Ce dernier y est transporté vers le haut (indice d'un chemin préférentiel du gaz). En dehors de ces zônes, le solide redescend en phase dense.

Dans les deux cas, la surface supérieure du lit est nette et le profil de pression rectiligne, sauf aux très fortes vitesses pour lesquelles un début d'élutriation a lieu dans le lit : au sommet de celui-ci, les particules montent au centre de la colonne et retombent en ruisselant à la paroi. Comme on le voit sur la figure 4.4, le profil de pression n'est plus linéaire.

Avec les grains fins (billes de verre et catalyseur), la fluidisation est très mauvaise : une bonne partie des grains s'agglomère sur le garnissage. Pour remédier à celà, on vibre la colonne, mais les mesures restent très imprécises.

312 - Loi d'expansion

Le graphique logarithmique portant la vitesse en fût vide U en fonction de la porosité ε est représenté à la figure 4.5. On y voit qu'aux fortes vitesses, les courbes sont linéaires, permettant une expression de la forme

$$U = U_i . \varepsilon^n$$

lorsque $\varepsilon > 0,65$ environ. La courbure semble d'autant plus marquée que le diamètre des grains est plus petit.

313 - Comparaison avec la relation de CAPES et McILHINNEY

La loi d'expansion de CAPES & McILHINNEY [17] est présentée au chapitre 2. Ces auteurs proposent des relations liant U_t/U_i et n à Re_t, U_t et Re_t étant respectivement la vitesse de la particule et son nombre de Reynolds dans les conditions terminales de chute libre. Dans le tableau 4.1, nous comparons nos valeurs de U_t/U_i et n à celles prévues par CAPES et McILHINNEY. Nous voyons que l'accord n'est pas très bon. En fait, la loi proposée par CAPES et McILHINNEY a été établie pour $Re_t > 40$, et leur figure

montre une dispersion des points plus grande aux basses valeurs de Re_t. Nos résultats sont explicités sur un graphique en fonction de Re_t (figure 4.6).

Grains	U_t/U_i		n		Re_t
	D'après la relation de CAPES & col	Notre résultat	D'après la relation de CAPES et col	Notre résultat	
Alumine 1	0,96	0,27	3,96	3,77	5,53
Alumine 2	0,97	0,86	3,96	3,83	40,0
Billes de verre	0,96	0,23	3,98	4,30	0,88
Catalyseur	0,96	0,33	3,98	2,70	4,63
Sable	0,96	0,47	3,96	4,95	26,7
Polystyrène	0,96	1,00	3,97	3,30	49,0
Abrasif	0,94	0,885	3,66	4,85	53,0

Tableau 4.1.

Remarque : Pour définir U_i et n, nous avons admis que les courbes d'expansion sont rectilignes pour ε supérieur à 0,65. Certains auteurs l'affirment [19], mais d'autres pensent qu'aux très bas Re_t, la courbe doit être concave [17] . L'imprécision de nos courbes (figure 5.5) ne permet pas de trancher.

Si la courbe d'expansion ne présente pas de partie rectiligne, la signification de U_i et n disparait. Cela peut expliquer le paradoxe suivant : nous trouvons qu'avec certains grains U_i peut être supérieur à U_t (jusqu'à 4 à 5 fois plus grand) ; ceci signifierait qu'on peut opérer à des vitesses de gaz très supérieures à U_t sans entraîner tout le lit, ce qui est physiquement difficilement acceptable.

Nous voyons que, en fonction de Re_t, U_t/U_i se corrèle bien, mais pas n. Nous pouvons compléter partiellement la loi de CAPES & McILHINNEY en proposant pour nos résultats la relation linéaire :

$$\text{pour } 0,8 < Re_t < 40 \quad , \quad U_t/U_i = 0,23 + 0,0135\ Re_t \qquad (4,16)$$

Mieux, en réunissant aux nôtres les résultats de ces auteurs, nous proposons la relation logarithmique (voir figure 4.7)

$$U_t/U_i = \mathrm{Log}(1,4\ Re_t^{0,15}) \qquad (4,17)$$

dans le large domaine $0,8 < Re_t < 2700$

32 - AVEC CONTRE-COURANT GAZ-SOLIDE

Comme on l'a démontré précédemment, il ne doit pas y avoir de relation biunivoque entre ε et U_r. La figure 4.8 le confirme : U_r dépend de ε (ou β) et de S. Il est surprenant de constater la présence d'un maximum sur ces courbes.

Appelons ε' la porosité qu'aurait le lit s'il y avait une relation biunivoque entre U_r et ε :

$$\varepsilon' = (U_r/U_i)^{1/m-1}$$

où U_i et n sont déterminés en lit stagnant.

Les corrélations empiriques suivantes permettent de caractériser l'écart de ε à ε' :

$$\varepsilon/\varepsilon' = 1 + 1{,}25\ U_g^{-0{,}53} U_s^{0{,}22}$$

$$\varepsilon/\varepsilon' = 1 + 1{,}22\ U_g^{-0{,}66} U_s^{0{,}82}$$

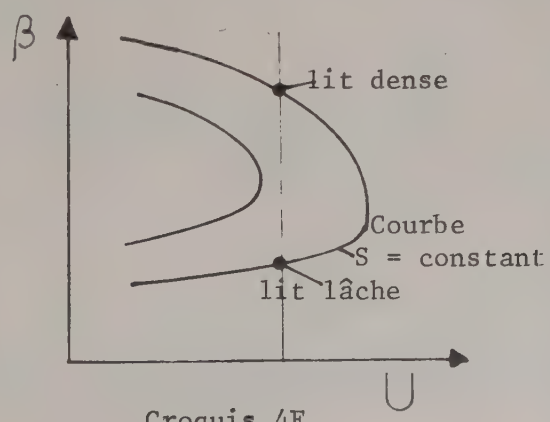
en unités CGS

respectivement pour le sable et l'abrasif. Nous pouvons voir sur la figure 4.9 que ces corrélations sont assez approximatives.

Remarque : Nous avons également étudié l'expansion de lits fluidisés lâches sans garnissage (Annexe 4.4). Il semble bien là aussi qu'il n'y ait pas de relation biunivoque entre U_r et ε. En effet, le système ne satisfait pas aux hypothèses exposées à l'annexe 4.1. Ceci justifie l'importance que peuvent avoir les effets électrostatiques.

4 - LIT LACHE, LIT DENSE, ENGORGEMENT

Comme prévu, nous avons effectivement observé le lit lâche et le lit dense dans notre appareil. Le lit dense a le même aspect que le lit stagnant décrit ci-dessus. Le lit lâche présente un aspect très dilué, les grains descendent en "cascades" entre les anneaux et on peut dire qu'ils coulent, ruissellent sur le garnissage. Peu de grains passent à travers les mailles. Dans le cas de l'abrasif végétal, assez gros, une partie importante des grains reste défluidisée, piégée dans le garnissage.



Croquis 4F

Les deux types de lits peuvent être superposés grâce à un réglage adéquat des vannes. Ceci signifie que pour le même débit de solide et le même débit de gaz, il peut y avoir deux points de fonctionnement. La figure 4.10, montrant la rétention β en fonction du débit de gaz U, pour différents débits de solide, le confirme. Voir aussi le croquis 4F.

L'engorgement est aussi observable et se produit à la base de la colonne. Si on veut "forcer" le débit de gaz en fermant V1 et en ouvrant V2 (figure 3.2), on observe que le lit A est défluidisé et le gaz est violemment rejeté à la base de la colonne. En tête de colonne, il ne se passe rien de remarquable.

5 - PERTE DE CHARGE

51 - SANS ECOULEMENT DE SOLIDE

En lit fluidisé stagnant, on a coutume de représenter la perte de charge totale par la valeur adimensionnelle $\Delta P/\Delta P_o$, où ΔP_o est le poids du lit par unité de section de la colonne. Ce rapport s'identifie à β_g/β. Nos résultats sont représentés sur la figure 4.11 en fonction du débit de gaz. Ces courbes montrent outre la cassure traditionnelle, une décroissance de la perte de charge avec le débit de gaz et β_g/β reste inférieur à 1.

Dans la littérature, seuls JAIN & CHEN [18] présentent une courbe perte de charge en fonction du débit de gaz dans un lit fluidisé garni : elle montre un palier horizontal (figure 4.12). Mais nous pensons que ces auteurs ont travaillé à trop faible vitesse pour que la décroissance soit visible.

Que β_g soit inférieur à β s'explique par les forces de friction garnissage solide, qui peuvent contribuer jusqu'à 25 % à l'équilibre du poids du solide. Elles sont dirigées vers le haut. Il est paradoxal qu'elles existent sans qu'il y ait de mouvement d'ensemble du solide. En fait, cela peut s'expliquer par la circulation interne du solide décrite ci-dessus : puisqu'il existe un débit de solide descendant en phase dense le long du garnissage, il y a friction avec ce dernier, et le solide reçoit de sa part une force dirigée vers le haut. Cette décroissance signifie que cette circulation interne augmente avec le débit de gaz. A titre de comparaison, rappelons qu'une telle circulation interne a également lieu dans les lits fluidisés classiques du fait des bulles. Là aussi, elle est d'autant plus intense que le débit de gaz est plus important.

52 - AVEC ECOULEMENT DE SOLIDE

Nous avons reproduit sur la figure 4.13 les courbes perte de charge en fonction de la vitesse dans un diagramme type "diagramme de ZENZ". On y voit que l'augmentation du débit de solide fait baisser la perte de charge. Cela provient simplement d'une friction plus importante grains-garnissage. En représentant la contribution du gaz au support du lit fluidisé (figure 4.14), c'est-à-dire β_g/β, on voit que celle-ci peut être très faible.

6 - FRICTIONS GRAINS-GARNISSAGE

Le rôle important joué par ces forces de friction a été mis en évidence dans deux circonstances : aux fortes concentrations et aux faibles concentrations.

61 - AUX FAIBLES CONCENTRATIONS

La friction solide-garnissage, β_p, calculée à partir de l'équation (4,4), est reportée en fonction de β sur la figure 4.15 dans le cas du lit du lit stagnant. Les courbes présentent un maximum pour $\beta = 0,3$.

La figure 4.16 montre bien que cette friction devient plus importante quand on fait croître le débit de solide. Sur cette figure, on a également reporté la 1ère bissectrice, $\beta_p = \beta$. Elle représente le cas où le solide est totalement soutenu par le garnissage : le lit "ruisselant". On voit que nos courbes coupent cette droite pour des valeurs finies de β : celà signifie qu'en lit lâche, en allant vers les petits débits de gaz, on obtient effectivement un lit ruisselant, dont la rétention ne dépend que du débit de solide.

Appelons β_ℓ cette rétention limite de ruissellement. Nous l'avons portée en fonction de S sur la figure 4.17 et nous voyons que la variation est linéaire. Dans le cas du sable, la droite passe par l'origine. Cela signifie que la vitesse de ruissellement est constante :

$$W_\ell = \frac{S}{\Omega\beta_\ell}$$

elle est égale à 16 cm/s pour notre sable. Dans le cas de l'abrasif végétal, la droite coupe l'axe des ordonnées en $\beta_{\ell\ell} = 0,025$, qui est la rétention statique du solide piégé dans le garnissage. Ce solide, immobile, ne ruisselle pas. Mais si on considère la quantité qui ruisselle effectivement, $\beta_\ell - \beta_{\ell\ell}$, on trouve une vitesse de ruissellement égale à 10 cm/s.

$$W_\ell = \frac{S}{\Omega(\beta_\ell - \beta_{\ell\ell})}$$

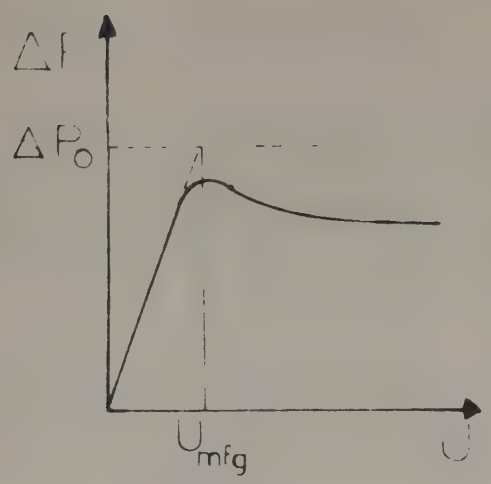
Remarque : Un phénomène analogue se produit pour les systèmes liquide-gaz à contre-courant dans les garnissages (colonnes de distillation). Considérons une colonne arrosée : aux faibles vitesses de gaz, la rétention varie peu avec le débit gazeux. C'est la zone de "pré-charge", pour laquelle le gaz contribue à l'équilibre du lit. Pour des vitesses supérieures, il y a une "zone de charge", où le gaz supporte une proposition croissante du solide. Celà accroit la perte de charge. Une nouvelle croissance des vitesses mène à l'engorgement.

62 - AUX FORTES CONCENTRATIONS

C'est au voisinage du minimum de fluidisation qu'on peut également mettre en évidence des forces de frictions grains-garnissage. Tous les résultats suivants ont été établis sur des lits stagnants.

621 - Vitesse minimale de fluidisation

Définissons U_{mfg}, la vitesse minimale de fluidisation comme le



Croquis 4D

point où la portion de la courbe de perte de charge correspondant au lit fixe coupe la droite $\Delta P = \Delta P_o$. Nous la comparons à U_{mf}, la vitesse minimale dans un lit classique. Nos résultats, ainsi que ceux de PARK & coll [19] sont rassemblés dans le tableau 4.2. Nous voyons que les rapports γ sont généralement du même ordre que ceux annoncés par KANG & OSBERG [20] : 1,10 à 1,25. Mais les deux alumines font singulièrement exception à cette règle.

	Grains	$\frac{dp}{dm}$	U_{mf} cm/s	U_{mfg} cm/s	$\gamma = \frac{U_{mfg}}{U_{mf}}$
	Alumine 1	0,144	0,8	1,45	1,82
	Alumine 2	0,36	3,20	6,10	1,91
	Billes verre	0,058	0,30	0,35	1,17
	Catalyseur	0,048	0,22	0,22	1,27
	Sable	0,226	7,7	8,60	1,12
	Polystyrène	0,410	4,4	5,10	1,16
	Abrasif	0,348	7,5	9,4	1,25
Billes de verre de PARK & coll.	A (120 μ)	0,15	1,92	2,96	1,12
	B (290 μ)	0,28	8,18	9,04	1,10
	C (470 μ)	0,48	20,7	23,1	1,11

Tableau 4.2

622 - Interprétation

Il est bien visible sur la figure 4.5 que le lit atteint une porosité anormalement grande lorsqu'on fait décroître les vitesses, par exemple avec l'alumine 1, on ne descend pas en dessous de $\varepsilon = 0,48$. Il n'est donc pas tassé et reste retenu par le garnissage.

Nous avons tracé sur la figure 4.18 les courbes de perte de charge avec et sans garnissage pour l'alumine n° 1. Les parties relatives au lit fixe sont dans un rapport constant de

$$\frac{\Delta P(\text{lit garni})}{\Delta P\ (\text{lit classique})} = 0,60$$

Le nombre de Reynolds étant au maximum de 0,07, cette perte de charge peut être décrite par la loi de KOZENY-CARMAN. Selon celle-ci, le rapport ci-

dessus prend la valeur :

$$\frac{\left[\frac{1-\varepsilon_{mf}^2}{\varepsilon_{mf}}\right]_{\text{lit garni}}}{\left[\frac{1-\varepsilon_{mf}^2}{\varepsilon_{mf}}\right]_{\text{lit classique}}} = 0,51$$

Ce calcul permet de penser que l'augmentation de la vitesse minimale due au garnissage provient de l'augmentation de la porosité du lit.

623 - Hystérèse

Pour mettre en évidence le rôle des forces de friction aux fortes concentrations, nous avons tassé la colonne (à débit nul) par vibration, puis nous avons refait les mesures en faisant croître les vitesses de gaz.

La perte de charge (figure 4.19) présente un maximum marqué, allant jusqu'à 65 % au-dessus du poids du lit. Cette "sur-pression" est bien connue dans les lits fluidisés classiques, où elle est cependant bien moins prononcée (quelques %). On l'attribue généralement aux frottements solide-paroi [21, 27]. Dans notre cas,la surface de frottement offerte par le garnissage est 5 à 6 fois plus grande que les parois seules. Ceci explique que notre maximum soit plus prononcé.

Pour des vitesses supérieures à celle correspondant au maximum, on observe une refluidisation progressive du lit commençant par le haut. Simultanément, on enregistre une "cassure" du profil de pression dans le colonne. L'hystérèse est terminée au minimum de fluidisation.

L'expansion du lit présente également une hystérèse (figure 4.20), fortement amplifiée par rapport au lit classique [23].

7 - CONCLUSION

Par rapport aux travaux des chercheurs canadiens, nos résultats mettent en évidence le rôle joué par les forces de friction solide-garnissage. En lit stagnant ou à contre-courant, celles-ci sont toujours dirigées vers le haut, contribuant ainsi à diminuer la perte de charge du gaz.

Ces forces interdisent l'existence d'une courbe unique vitesse relative-concentration ; en conséquence, les mesures en lit stagnant ne suffisent plus pour prévoir le comportement d'un lit fluidisé avec écoulement ; il est nécessaire de procéder à une expérimentation plus complexe.

Aux très faibles concentrations, ces forces soutiennent presque tout

le solide : on a affaire à un "lit ruisselant". Cette notion permet d'établir des analogies profondes avec les systèmes gaz-liquide.

En outre, nos travaux ont partiellement confirmé ceux de CAPES & McILHINNEY sur l'expansion du lit et de préciser certains résultats relatifs à la vitesse minimale de fluidisation.

BIBLIOGRAPHIE

[1] G.B. WALLIS
"One dimensional two-phase flow"
McGraw-Hill, 1969

[2] L. LAPIDUS et J.C. ELGIN
"Mechanics of vertical-moving fluidized systems"
A.I.Ch.E.Jl 3 (1957), 63

[3] D.L. STRUVE
"Mechanics of two-phase flow : cocurrent counter gravity flow of ideal vertical fluidized systems"
These, Princeton University 1953

[4] D.L. STRUVE, L. LAPIDUS & J.C. ELGIN
"The mechanics of moving vertical fluidized systems III - Application to co-current counter gravity flow"
Can. Jl. Chem. Eng. (1958), 143

[5] B.G. PRICE, L. LAPIDUS & J.C. ELGIN
"Mechanics of vertical moving fluidized systems II - Application to countercurrent operation"
A.I.Ch.E.Jl 5 (1959), 93

[6] T.S. MERTES & H.B. RHODES
"Liquid-particle behaviour"
Chem. Eng. Prog. 51 (1955), 513

[7] E. BARNEA & J. MIZRAHI
"A generalized approach to the fluid dynamic of particulate systems. Part. 1 : General correlation for fluidization and sedimentation in solid multiparticle systems"
The Chem. Eng. Jl., 5 (1973), 14

[8] J.M. MATSEN
"Flow of fluidized solids and bubbles in standpipes and risers"
Powd. Technol. 7 (1973), 93

[9] F.A. ZENZ
"Two phase fluid-solid flow"
Ind. Eng. Chem. 41 (1949), 2801

[10] L.S. LEUNG et L.A. WILSON
"Downflow of solids in standpipes"
Powder Technol. 7 (1973), 343

[11] Y. YOUSFI
"Contribution à l'étude d'un réacteur à transport pneumatique - Hydrodynamique et transfert de chaleur"
Thèse de Doctorat, Université Nancy I, 1973

[12] C.E. CAPES
"Dense phase pneumatic conveying"
Can. J. Chem. Eng. 41 (1971), 182

[13] F.A. ZENZ et D.F. OTHMER
"Fluidization and fluid-particle systems"
Rheinhold 1960

F.A. ZENZ
"Visualizing gas-solid dynamic in catalytic Processes
Petr. Ref. 32 (1953), 123

[14] J. HAPPEL
"Pressure drop due to vapor flow through moving beds"
I & EC 41 (1949), 1161

S.M. YOON & D. KUNII
"Gas flow and pressure drops through moving beds"
I & EC Proc. Des. Devel. 9 (1970), 559

[15] A.S. MASUDOV, MM. YUSIPOV, N.U. RIZEAV et M.I. NIYAZOV
"The problem of the velocity of hanging of granular materials during fluidization in packed equipment"
Int. Chem. Eng. 10 (1970), 536

[16] B.H. CHEN
"Pressure drop in packed beds of woven screen cylinders"
Can. J. Chem. Eng. 51 (1973), 114

[17] C.E. CAPES et A.E. Mc ILHINNEY
"The pseudo-particulate expansion of screen packed gas fluidised beds"
A.I.Ch.E.Jl. 14 (1968), 17

[18] S.C. JAIN et B.H. CHEN
"Heat transfer in a screen-packed fluidised bed"
Chem. Eng. Prog. Symp. Ser. 116 (1972), 97

[19] W.H. PARK, C.E. CAPES et G.L. OSBERG
"Axial gas dispersion in fluidised bed containing cylindrical screen packing"
Inst. Chem. Eng. (London)
Proc. Symp. Montréal, Sept. 1968, 140

[20] W.K. KANG et G.L. OSBERG
"Longitudinal particle mixing in a screen-packed gas-solid fluidized bed"
Can. J. Chem. Eng. 44 (1968), 162

[21] A.A.H. DRINKENBURG
"Gas transfer in a fluidized bed"
Ph. D. Thesis, Techn. Univ. Eindhoven 1970

[22] J. VERLOOP et P.H. HERTJES
"The Onset of fluidization"
Powd. Techn. 7 (1973) 161

[23] R.G. KUNZ
"Minimum fluidization velocity : fluid cracking catalyst and spherical glass beads"
Powd. Techn. 4 (1970:71) 156

3ème Partie

APPLICATIONS DU LIT FLUIDISE GARNI

PLAN DU CHAPITRE 5

1 - APPLICATIONS

11 - REACTIONS GAZ-SOLIDE CATALYTIQUES ET NON CATALYTIQUES
12 - TRIAGE DES GRAINS PAR SEGREGATION
13 - TRANSPORT PNEUMATIQUE EN PHASE DENSE
14 - CONTRE-COURANT GAZ-SOLIDE

2 - CONCEPTION D'UN LIT FLUIDISE GARNI

21 - ASPECTS MAL CONNUS - LIMITATION DU LIT FLUIDISE GARNI
211 - Extrapolation - Calcul
212 - Tenue du garnissage

22 - CHOIX A FAIRE
221 - Choix du garnissage
222 - Choix des conditions de fonctionnement
223 - Exemple

3 - CONCLUSION

CHAPITRE 5 APPLICATIONS DU LIT FLUIDISE GARNI

Les chapitres précédents montrent les améliorations apportées par le garnissage à la fluidisation. Celles-ci doivent donc rendre possible de nouvelles applications pour la fluidisation et certaines ont déjà fait l'objet d'études de laboratoire. Cependant, il faut aussi tenir compte des limitations imposées par la présence du garnissage et de certains aspects peu ou mal connus, malgré l'abondant travail des chercheurs canadiens. On peut alors indiquer les principes de base sur lesquels doit s'appuyer la conception d'une unité industrielle.

1 - APPLICATIONS

11 - REACTIONS GAZ-SOLIDE

111 - Réaction catalytique

Diminuant le mélangeage du gaz, le garnissage permet d'obtenir de meilleurs conversions en lit fluidisé. ISHII et OSBERG [1] et KATO et coll [2] ont mis en oeuvre respectivement l'isomérisation du cyclopropane et l'hydrogénation de l'éthylène dans des lits fluidisés garnis. Ces réactions sont de cinétique simple et sans effet thermique important ; elles ont permis de vérifier des modèles d'écoulement "à deux phases", "piston diffusionnel" et "cascade de réacteurs agités".

Pour un même temps de contact, les performances des réacteurs s'établissent dans l'ordre suivant :

lit fluidisé < lit fluidisé garni < lit fixe

ce qui correspond à

[Mélangeage + court-circuitage] < [Petit mélangeage du gaz] < [Ecoulement piston ou quasi-piston]

Au point de vue conversion, le lit fixe est le meilleur choix. En fait, il faut tenir compte d'autres exigences :

- la réaction peut être exothermique et il y a nécessité d'évacuer la chaleur dégagée.

- on peut avoir besoin de faire circuler le catalyseur (pour une régénération par exemple).

Dans ces deux cas, le lit fixe devient problématique et le lit fluidisé garni peut être plus favorable : il a à la fois les qualités du lit fluidisé classique (bons transferts thermiques) et celles du lit fixe (mélangeage réduit). Nous verrons au chapitre 6 qu'on peut en tirer de gros avantages.

112 - Réaction non catalytique

La plupart des réactions gaz-solide non catalytiques ne sont pas compatibles avec des anneaux métalliques : ces derniers ne tiennent pas à la température, ou bien ils réagissent rapidement avec les gaz. Il n'y a que la réduction du minerai de fer qui convienne. Cette réaction a été mise en oeuvre par OSBERG et TWEEDLE [3] dans un lit fluidisé garni. Mais le fer métallique obtenu se présente sous une forme difficile à fluidiser, provoque l'agglomération de la poudre. La présence du garnissage favorise ce phénomène.

113 - Cas où le garnissage est catalytique

Dans certaines études, on a fait jouer au garnissage un rôle catalytique et le solide fluidisé chimiquement inerte sert à promouvoir les transferts de matière et de chaleur [4, 5]. Etant donné la faible surface spécifique du garnissage, cela ne semble pas très intéressant.

12 - TRIAGE DES GRAINS

Nuisible par ailleurs, la ségrégation des particules du lit fluidisé garni peut être utilisée pour trier des grains. CAPES et SUTHERLAND [6] ont ainsi séparé des minerais de fer et de germanium, ou des graines de céréales mélangées. Pour éviter un rétro-mélangeage trop important, il faut fluidiser à basse vitesse. CAPES et SUTHERLAND ont obtenu une bonne séparation avec un temps de séjour des grains de 7 minutes. On peut coupler ce système à une autre opération (séchage....).

13 - TRANSPORT PNEUMATIQUE EN PHASE DENSE

Le bouchonnage rend impossible l'obtention de transports pneumatiques en phase dense. En supprimant ce phénomène, le garnissage permet cette obtention. Il s'agit simplement d'un lit fluidisé à co-courant. Etudié par CAPES [7] , ce procédé a fait l'objet d'un brevet [8]. Travaillant à faible vitesse , il permet des économies d'énergies et il peut être couplé à des opérations de séchage nécessitant des temps de séjour "intermédiaires" de 3 à 10 s.

14 - CONTRE-COURANT GAZ-SOLIDE

Certaines opérations mettent en jeu des échanges de matière ou de chaleur entre un gaz et un solide doivent de préférence être mises en oeuvre à contre-courant. Dans l'industrie, on utilise le lit mobile où le solide s'écoule "en bloc" (Hypersorption [9]), ou par des lits fluidisés superposés (désulfuration des produits issus d'un réacteur CLAUS par le procédé WESTACO

[10], entre autres) ou bien par des procédés mixtes (traitement des schistes bitumineux [11]).

Toutes ces opérations : adsorption, désorption, chromatographie, récupération de chaleur pourraient être réalisées dans un lit fluidisé garni à contre-courant. Ce dernier permet de traiter de gros débits de solide et est d'un emploi assez souple. En revanche, le mélangeage des grains peut-être nuisible.

2 - CONCEPTION D'UN LIT FLUIDISE GARNI

21 - ASPECTS MAL CONNUS - LIMITATION DU LIT FLUIDISE GARNI

211 - Extrapolation - calcul

Ce point a été évoqué au chapitre 2. La corrélation (2,3) peut être tenue pour très valable, mais les corrélations (2,5) et (2,8) n'ont été établies que dans une gamme de paramètres bien réduite. A notre connaissance, il n'y a actuellement aucune application de lits fluidisés garnis de grands diamètres.

212 - Tenue du garnissage

Il ne faut évidemment pas dépasser la température de fusion du matériau constituant les anneaux. En fait, même des températures inférieures doivent être évitées, si elles peuvent entraîner le ramolissement du garnissage, favorisant des affaissements de ce dernier. La tenue mécanique du garnissage, selon BERGOUGNOU [12] est un problème important et aucune étude n'y a été consacrée.

22 - CHOIX A FAIRE

221 - Choix du garnissage

Selon CAPES et McILHINNEY [13], il faut choisir le rapport maille/diamètre du grain supérieur à trois pour éviter une rétention statique des particules sur les anneaux. Rien n'est dit dans la littérature sur la dimension de ceux-ci, mais à notre avis, il faut les choisir "carrés" (hauteur= diamètre), de quelques centimètres au plus (si les grains ne sont pas trop gros) et de manière à pouvoir placer au moins 4 anneaux dans le diamètre de la colonne. Le fil doit être d'un diamètre comparable au grain, mais doit surtout assurer une bonne tenue mécanique du garnissage.

222 - Choix des conditions de fonctionnement

Les différences existant entre un lit fluidisé classique et un lit fluidisé garni font qu'on ne doit pas choisir certains paramètres de fonctionnement de la même manière. Le tableau ci-après exprime ces différences dans

le cas où l'on voudrait mettre en oeuvre une réaction chimique : l'on veut donc avoir le meilleur contact gaz-solide, le moindre mélangeage du gaz, la meilleure production.....

	Lit fluidisé classique	Lit fluidisé garni
Grains diamètre moyen	PETIT < 100μ. de façon que la fluidisation soit "douce" avec des petites bulles. 50 à 60μ pour les catalyseurs de cracking.	GROS > 100μ. La fluidisation est toujours douce et il vaut mieux éviter les poudres fines, toujours un peu cohésives, qui peuvent se défluidiser sur le garnissage.
Ecart granulométrique	LARGE, encore pour favoriser une fluidisation "douce". On conseille $dp_{max}/dp_{min} = 12$	ETROIT, car l'écart granulométrique ne joue pas sur la qualité de fluidisation ; mieux vaut le choisir étroit pour limiter la tendance à la ségrégation et à l'entrainement
Gaz rapport U/U_{mf}	GRAND pour des raisons de production et parce qu'ainsi le contact gaz-solide et le coefficient de transfert de chaleur sont meilleurs.	GRAND pour les mêmes raisons, mettons $U/U_{mf} > 10$, pour avoir une fluidisation "quasi-particulaire" et un coefficient de transfert de chaleur à la paroi comparable à celui du lit fluidisé classique.
Distribution	SOIGNEE, surtout si la réaction est rapide et la granulométrie pas très bien choisie. Nombreux problèmes technologiques.	SOIGNEE. En principe, le distributeur a moins d'influence sur la performance du réacteur (surtout à petit diamètre). Mais attention aux problèmes technologiques qui peuvent être plus cruciaux que dans le lit fluidisé classique (érosion locale du garnissage...).
Lit géométrie, rapport H/D	LIT "CARRE", rapport H/D < 2 en général dans les lits industriels, surtout si la granulométrie est mauvaise.	LIT LONG, pas de problèmes de bouchonnage et on peut ainsi réaliser des gradients de concentration. H/D illimité.
Calculs complexité ou précision	COMPLEXES ou PEU PRECIS. On a le choix entre les modèles proches de la réalité, mais très complexes et nécessitant la connaissance (donc la mesure) de beaucoup de paramètres et des modèles plus "phénoménologiques", simplifiés et peu précis, pour chercher des tendances.	PLUS SIMPLES, le comportement du lit étant très simplifié. Modèle type "piston diffusionnel", éventuellement corrigé, mais de toutes façons peu de paramètres à mesurer.

	Lit fluidisé classique	Lit fluidisé garni
Calculs Extrapolation	IMPOSSIBLE dans l'état actuel de nos connaissances. Il faut un pilote.	POSSIBLE, certainement pour des diamètres inférieurs à 15 cm, mais on ignore ce qui peut arriver au-delà. Problème d'uniformisation de la distribution du gaz.
Cyclones Coût	IMPORTANT, car pour recueillir les petites particules, il faut des petits cyclones donnant lieu à une forte perte de charge. Ils doivent être multipliés.	MOINS IMPORTANT (probablement) car les particules entraînées seraient plus grosses et leur débit moins important si la granulométrie est bien choisie. Ceci n'est plus valable évidemment s'il y a de l'attrition.
Emplacement	AU-DESSUS DE LA H.T.D. cette hauteur totale de désengagement atteint quelques mètres.	AU-DESSUS DU LIT, car en principe, il n'y a pas de hauteur de désengagement (ou très faible).

223 - Exemple

L'indice 1 se rapporte à un lit classique, l'indice 2 à un lit fluidisé garni. Dans les deux lits, on opère à 10 fois la vitesse minimale. On traite le même débit Q de gaz avec le même temps de passage, donc le même volume de réacteur.

$$Q = \Omega_1 \times 10 \times U_{mf1} = \Omega_2 \times 10 \times U_{mf2}$$

$$\text{Soit} \quad \frac{\Omega_1}{\Omega_2} = \frac{U_{mf2}}{U_{mf1}} \qquad (1)$$

à même volume, donc :

$$\frac{H_1}{H_2} = \frac{\Omega_2}{\Omega_1} = \frac{U_{mf1}}{U_{mf2}} \qquad (2)$$

Le rapport Hauteur/Diamètre est intéressant

$$\frac{H_1/d_{t1}}{H_2/d_{t2}} = \left(\frac{U_{mf1}}{U_{mf2}}\right)^{3/2} \qquad (3)$$

D'où l'intérêt de travailler avec des gros grains. Admettons que le lit n° 1 utilise des grains fins (50μ), on peut alors facilement gagner un facteur 10 sur la vitesse minimale en utilisant des grains de 200μ dans le réacteur n° 2. Ce dernier aurait donc un diamètre 3,16 fois plus petit et serait 10 fois plus long.

Le tableau suivant montre les dimensions industrielles que pourraient avoir les deux réacteurs.

	Lit fluidisé classique 1	lit fluidisé garni 2
Diamètre moyen des grains	50 μ	200 μ
Diamètre du réacteur	3 m	0,95 m
Hauteur du réacteur	3 m	30 m
Géométrie rapport H/d_t	1	31,6

La géométrie du réacteur 2 est très favorable pour avoir un écoulement piston du gaz et obtenir de bonnes conversions.

Remarquons que notre lit fluidisé est déjà assez haut. En utilisant des grains plus gros, on devrait encore l'allonger mais on atteindrait vite des tailles irréalisables. Cela signifie que notre appareil est mieux adapté pour mettre en oeuvre des réactions très rapides qui nécessitent un court temps de contact du gaz.

3 - CONCLUSION

Le lit fluidisé garni n'a pas actuellement d'applications industrielles, à cause de la date relativement récente de son étude : la première publication mentionnant l'usage d'anneaux de grillage remonte à 1963.

Il ne fait pas de doute qu'il doit en avoir dans l'avenir, car il réunit les qualités du lit fluidisé (souplesse, uniformité de température) et celles du lit fixe (bonnes conversions, grands rapports hauteur/diamètre).

Il faut se garder d'appliquer les mêmes principes de conception au lit fluidisé garni qu'au lit fluidisé classique. Des différences de comportement suggèrent de fluidiser des gros grains avec des grandes vitesses de gaz. C'est bien par là que le lit fluidisé garni est en mesure d'étendre considérablement le domaine d'application de la fluidisation.

BIBLIOGRAPHIE

[1] T. ISHII et G.L. OSBERG
"Effect of packing on the catalytic isomerization of cyclopropane in fixed and fluidized bed"
A.I.Ch.E.Jl 11 (1965) 279

[2] K. KATO, N. TAKEUCHI, U. ITO et H. KUBOTA
"Hydrogenation of ethylene in packed fluidized bed"
J. Chem. Eng. Jap. 2 (1969), 204

[3] G.L. OSBERG et T.A. TWEEDLE
"Reduction of an iron ore concentrate with hydrogen in a screen-packed fluidized bed"
I & EC Proc. Des. Devel. 5 (1966), 87

[4] A.E. McILHINNEY et G.L. OSBERG
"Silver sprayed cylindrical mesh packing in a fluidized bed"
Can. J. Chem. Eng. (Octobre 1964), 232

[5] T. YAMANAKA, Y. YAMANAKA et H. KUBOTA
"Performance of a reaction in catalyst-packed-fluidized bed"
J. Chem. Eng. Jap. 3 (1970), 213

[6] C.E. CAPES et J.P. SUTHERLAND
"One separation in packed fluidized bed"
I & EC Proc. Des. Devel. 5 (1966), 330

[7] C.E. CAPES
"Dense phase pneumatic conveying"
Can. J. Chem. Eng. 49 (1971), 182

[8] C.E. CAPES et A.E. McILHINNEY
"Method and apparatus for conveying particulate material upwardly in a gas stream"
Can. Pat. n° 914 728 (1971)

[9] C. BERG
"Hypersorption process for separation of light gases"
Trans. Am. Inst. Chem. Eng. 42 (1946), 665

H. KENDE, R.G. FAIRFIELD, J.C. FRANK et L.W. ZAHNSTECHER
"Ethylène recovery commercial hypersorption operation"
Chem. Eng. Prog. 44 (1948), 575

[10] F.J. BALL, G.N. BROWN, J.E. DAVIS, A.J. REPLIK et S.L. TORRENCE
"Take sulfur out of waste gases"
Hydr. Proc. (Oct. 1972), 125

[11] G.Y. WEISMANTEL
"Shale Oil - Not long now"
Chem. Eng. Mai 1974, 62

[12] M.A. BERGOUGNOU
Communication personnelle

[13] C.E. CAPES et A.E. McILHINNEY
"The pseudo-particulate expansion of screen packed gas fluidised bed"
A.I.Ch.E.Jl. 14 (1968), 217

PLAN DU CHAPITRE 6

1 - MODELE REPRESENTATIF DU REACTEUR

11 - HYPOTHESES
111 - Hydrodynamique
112 - Mélangeage du gaz
113 - Conductibilité thermique du milieu
114 - Transfert de chaleur à la paroi

12 - ECRITURE

2 - APPLICATION A L'ANHYDRIDE PHTALIQUE

21 - L'ANHYDRIDRE PHTALIQUE - PROCEDES DE FABRICATION
22 - DONNEES CINETIQUES
23 - VALIDITE ET LIMITES DE L'EQUATION CINETIQUE
24 - EQUATIONS DU REACTEUR
25 - CHOIX DES CONDITIONS DE FONCTIONNEMENT
251 - Diamètre du grain
252 - Vitesse du gaz
253 - Temps de contact, longueur du réacteur
254 - Diamètre du réacteur
255 - Température en amont
256 - Concentration en amont
257 - Remarque

26 - ROLE EFFECTIF DU MELANGEAGE DU GAZ

3 - RESULTATS - DISCUSSION

31 - PERFORMANCES
32 - CONTROLE
33 - DISCUSSION

4 - CONCLUSION

CHAPITRE 6

UNE ETUDE PROSPECTIVE : LE LIT FLUIDISE GARNI COMME REACTEUR CATALYTIQUE

Afin de mettre en valeur tous les arguments précédemment exposés en faveur du lit fluidisé garni, nous nous proposons de comparer ce procédé aux autres dans le cas particulier de la réaction chimique. La simplicité du lit fluidisé garni et les nombreux travaux qui y ont été consacrés permettent d'aborder cette comparaison par des voies théoriques, ce qui en fait ne permet que de donner une idée approximative des avantages potentiels de l'un ou de l'autre procédé, de discerner les aspects intéressants du lit fluidisé garni et finalement de suggérer un type de réacteur (géométrie, conditions de fonctionnement) qui les utiliserait au mieux.

Comme nous l'avons déjà dit, ce sont des réactions de fortes thermicité qui permettraient au réacteur de concurrencer le lit fixe. Aussi avons-nous choisi comme exemple de comparaison la synthèse catalytique en phase gazeuse de l'anhydride phtalique à partir de l'ortho-xylène. Sa cinétique simple et bien connue, nous est fournie par FROMENT [1] qui a mené une étude théorique très approfondie sur la miseen oeuvre de cette réaction en lit fixe. Cette étude nous servira de point de comparaison. Signalons que dans notre laboratoire, cette réaction a servi d'exemple pour calculer d'autres types de réacteurs [2, 3].

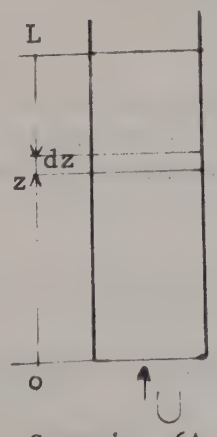
1 - MODELE REPRESENTATIF DU REACTEUR

11 - HYPOTHESE

Nous présentons d'abord les hypothèses de notre modèle, en les justifiant.

111 - Hydrodynamique

Nous admettons que la pression et la vitesse du gaz sont constantes dans tout le réacteur et que le degré de vide ε y est uniforme. Cette hypothèse est valable si le lit fluidisé n'est pas trop haut et si la réaction chimique a lieu sans trop d'augmentation de volume. En outre, nous supposons que le profil radial de vitesse du gaz est plat.



Croquis 6A

112 - Mélangeage du gaz

Nous supposerons que l'écoulement du gaz est du type "piston-diffusionnel". Le flux molaire du constituant i à la cote z s'écrit donc :

$$\Phi_i = UC_i - D_i dC_i/dz \qquad (6,1)$$

où

U est la vitesse superficielle du gaz
C_i est la concentration du constituant i

D_i est le coefficient de diffusion du constituant i. Comme c'est la turbulence du gaz qui régit la diffusion, nous admettrons que pour tout i :

$$D_i = D_g = \text{coefficient de diffusion du gaz.}$$

Cette hypothèse représente la réalité de manière satisfaisante : PARK et coll. [4] ont mesuré D_g à l'aide de courbes de distribution des temps de séjour et ont pu rendre compte des résultats de ISHII et OSBERG [5]. Implicitement, cette hypothèse suppose que le profil radial de concentration est plat.

113 - Conductibilité thermique du milieu

Nous avons vu au chapitre 2 que JAIN et CHEN [6] ont mis en évidence le rôle essentiel joué par les grains dans la conductibilité thermique interne du lit fluidisé. Nous supposerons que celle-ci est suffisamment grande pour que le profil radial de température soit plat. Pour cela, il faut que le diamètre du réacteur ne soit pas trop grand. Nous sommes donc amenés à admettre que le milieu possède une conductibilité thermique interne λ ; il existe donc un flux axial de chaleur :

$$q_{diff} = - \lambda \frac{dT}{dz} \qquad (6,2)$$

et λ s'écrit :

$$\lambda = \beta \rho_s Cp_s \alpha_t \qquad (6,3)$$

où β est la concentration des grains
$\rho_s Cp_s$ leur chaleur spécifique volumique
α_t est la diffusivité de la chaleur

114 - Transfert de chaleur à la paroi

Pour fixer les idées, nous supposerons que la température T_t de la paroi du réacteur est constante et nous écrirons alors le flux spécifique de chaleur entre le lit fluidisé et la paroi :

$$q = h(T-T_t) \qquad (6,4)$$

où h est le coefficient de transfert de chaleur à la paroi.

115 - Transfert de chaleur grain-gaz

Nous supposerons que les transferts de chaleur et de matière entre le gaz et les gaz sont suffisamment rapides pour qu'en dépit de l'agitation de ces derniers, ces processus soient en régime permanent en tout point du lit.

12 - ECRITURE

A l'aide de ces hypothèses, nous sommes en mesure de décrire le com-

portement du réacteur en régime permanent, par des bilans :

- bilan de matière sur chaque constituant
- bilan d'énergie du gaz
- bilan thermique du grain.

Ces calculs sont développés à l'annexe 6.1. Si on a n composants et R réactions indépendantes, on décrit le système par (n+1) variables qui sont :

- les n conversions X_i des composants
- la température T du gaz

Ces variables sont fonctions de la cote z et solutions d'un système de (n+1) équations différentielles linéaires du deuxième ordre à coefficients non constants, admettant 2n+2 conditions aux limites.

Ce système est trop compliqué pour être directement utilisable, mais peut raisonnablement être simplifié. Il s'écrit alors :

$$\frac{dX_i}{d\alpha} - \frac{1}{Pe_g}\frac{d^2X_i}{d\alpha^2} = \tau\frac{\rho_s\beta}{C_{1,0}}r_i \ , \ i = 1 \text{ à } n \qquad (6,5)$$

$$\frac{dT}{d\alpha} + Nut(T-T_t) - \frac{1}{Pe_t}\frac{d^2T}{d\alpha^2} = -\frac{\tau C_{1,0}\beta}{\rho_0 Cp_0}(\Sigma_q r_q \Delta H_q) \qquad (6,6)$$

où :

- X_i est la conversion du constituant i
- α est la cote réduite : $\alpha = z/L$
- Pe_g est le nombre de Peclet du gaz : $Pe_g = UL/D$
- r_i est la vitesse d'apparition du constituant i rapportée à l'unité de masse du catalyseur
- r_q est la vitesse de la réaction q
- $C_{1,0}$ est la concentration du produit à convertir en amont du réacteur
- ρ_0 et Cp_0 sont la masse et la chaleur spécifique du gaz en amont du réacteur
- Nut est le nombre d'unités de transfert de chaleur : $Nut = 4hL/\rho_0 Cp_0 Ud_t$
- τ est le temps de passage : $\tau = L/U$
- dp est le diamètre moyen du grain
- Pe_t est le "nombre de Peclet" thermique : $Pe_t = \lambda/\rho_0 Cp_0 UL$

Les conditions aux limites sont :

$$X_i - \frac{1}{Pe_g}\frac{dX_i}{d\alpha} = 0 \qquad \text{pour } \alpha = 0^+ \text{ et i de 1 à n} \qquad (6,7)$$

$$T - \frac{1}{Pe_t}\frac{dT}{d\alpha} = T_0 \qquad \text{pour } \alpha = 0^+ \qquad (6,8)$$

$$\frac{dX_i}{d\alpha} = 0 \qquad \text{pour } \alpha = 1 \text{ et i de 1 à n} \qquad (6,9)$$

$$\frac{dT}{d\alpha} = 0 \qquad \text{pour } \alpha = 1 \qquad (6,10)$$

où T_0 est la température des gaz entrant.

Comparons ces équations avec celles du lit fixe (modèle simple, unidimensionnel) : nous voyons que leur seule différence est la présence des termes du second ordre, exprimant les mélangeages axiaux du gaz et de la chaleur.

Pour résoudre ce système, il faut en connaitre tous les paramètres, que nous classons ainsi :

- Paramètres liés à la réaction chimique

r_q est la vitesse apparente de la réaction q et il est nécessaire qu'elle soit bien connue. Cette grandeur intègre les processus chimiques purs ayant lieu à la surface du catalyseur et les processus diffusionnels intervenant autour et à l'intérieur du grain (voir à l'annexe 6.2 l'étude de ces processus dans un cas particulier).

ΔH_q est la chaleur de la réaction q, qui est une donnée thermodynamique simple.

- Propriétés du lit fluidisé garni

La rétention β, le nombre d'unité de transfert de chaleur Nut, les nombresde Peclet Pe_g et Pe_t sont des propriétés du lit fluidisé garni ne dépendent que du type de grain utilisé et de la vitesse du gaz. On peut les estimer avec des précisions plus ou moins grandes, grâce à la bibliographie (voir à l'annexe 6.3).

- Grandeurs géométriques à choisir

La longueur L et le diamètre d_t du tube ainsi que le diamètre dp des grains sont en principe choisis pour faire travailler le réacteur dans les conditions optimales.

- Variables de contrôle

La vitesse du gaz U, la température à l'entrée T_o, la concentration $C_{1,0}$ et la température du tube T_t sont des grandeurs par lesquelles on peut agir sur le réacteur en cours de son fonctionnement pour le contrôler.

2 - APPLICATION A L'ANHYDRIDRE PHTALIQUE

21 - L'ANHYDRIDRE PHTALIQUE : PROCEDES DE FABRICATION [7]

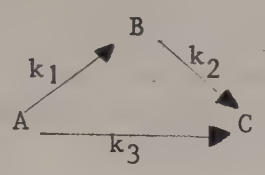
La presque totalité de la production mondiale de l'anhydridre phtalique (2 millions de tonnes en 1971) est réalisée par oxydation catalytique en phase gazeuse de naphtalène et de l'ortho-xylène. La concurrence est serrée entre le lit fixe et le lit fluidisé. Ce dernier l'emporte avec le naphtalène mais il est dépassé avecl'ortho-xylène. Mais c'est ce deuxième corps qui est le plus intéressant pour des raisons évidentes de thermicité et de rendement massique (pour produire une tonne d'anhydride phtalique, il faut 0,86 tonne de naphtalène, mais seulement 0,72 tonne d'ortho-xylène). Le catalyseur d'oxygène ménagée est à base de pentoxyde de vanadium.

La mise en oeuvre de l'oxydation de l'ortho-xylène en lit fixe nécessite une technologie assez lourde. La charge doit être répartie dans une "forêt" de 10 000 tubes entre lesquels circule un fluide réfrigérant de sels fondus (mélange de nitrates et de nitrites de sodium) vers 350°C ; l'alimentation doit être conçue de manière à éviter les risques d'explosion..... ou, sans aller jusque là, c'est l'emballement du réacteur qui est à craindre.

Pour cette réaction, FROMENT [1] a étudié théoriquement le lit fixe et son travail a servi de point de comparaison à YOUSFI [2] pour un réacteur à lit transporté. Nous pourrons donc faire des comparaisons entre les procédés, tout au moins des comparaisons de résultats théoriques.

22 - DONNEES CINETIQUES

La cinétique dépend de catalyseur ; aussi, peut-on compter un grand nombre de schémas cinétiques |7|. Nous faisons le même choix que FROMENT :



A = O-xylène
B = Anhydride phtalique
C = Produits de combustion

Ce schéma cinétique est la simplification d'un modèle plus compliqué de HERTEN et FROMENT [8] et représente bien l'acte chimique pur se déroulant à la surface du catalyseur. Ces données numériques sont explicitées à l'annexe 6.2. On peut considérer qu'en présence d'un excès d'oxygène, les réactions sont du premier ordre.

En fait, à cet acte chimique pur, il faut intégrer les processus de transfert ayant lieu au niveau du grain :

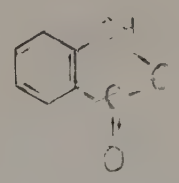
- transfert de matière dans le grain
- transfert de matière autour du grain
- transfert de chaleur dans le grain
- transfert de chaleur autour du grain.

A l'annexe 6.2, nous montrons que dans les conditions d'hydrodynamique où nous nous trouvons et pour des grains de catalyseurs ne dépassant pas 500µ, ce processus sont suffisament rapides pour que l'on puisse considérer que le grain est homogène en concentration et en température et que la seule loi de FROMENT suffit à représenter la cinétique globale de la réaction au niveau du grain.

23 - VALIDITE ET LIMITES DE L'EQUATION CINETIQUE

Les données de FROMENT ont été obtenues sur des grains de 3 mm, peu poreux. Il peut paraitre osé d'étendre ces données à des grains plus petits que 500µ, pour lesquels la surface spécifique peut être beaucoup plus grande et les sites actifs plus ou moins nombreux. Cependant, n'ayant pas de meilleures données, nous devons bien nous contenter de celles-ci.

De plus, le schéma de FROMENT est simplifié et cela est fort commode pour les calculs. Mais on ne peut pas tenir compte des autres réactions qui, si elles sont très secondaires, amènent cependant des co-produits sous forme de traces, en particulier le phtalide :



est un élément important de la qualité finale du produit parce que difficile à séparer et nuisible dans les utilisations de l'anhydride phtalique.

Enfin, le catalyseur auquel se réfère FROMENT est destiné au lit fixe et il est peu probable qu'il resisterait à l'attrition dans un lit fluidisé (c'est probablement pour cette raison qu'il n'existe pas de lits fluidisés pour l'ortho-xylène).

24 - EQUATIONS DU REACTEUR

Appelons C_{AO} la concentration d'O-xylène en amont du réacteur. Les concentrations en un point quelconque s'écrivent :

$$C_A = C_{AO}(1-X)$$

$$C_B = C_{AO}X'$$

où X est la conversion totale de l'o-xylène et X' sa conversion en anhydride phtalique.

Les équations (6,7) à (6,10) peuvent s'écrire

$$\frac{dX}{d\alpha} - \frac{1}{Pe_g}\frac{d^2X}{d\alpha^2} = \beta\tau(k_1^* + k_3^*)(1-X) \qquad (6,11)$$

$$\frac{dX'}{d\alpha} - \frac{1}{Pe_g}\frac{d^2X'}{d\alpha^2} = \beta\tau(k_1^*(1-X)-k_2^*X') \qquad (6,12)$$

$$\frac{dT}{d\alpha} + Nut\,(T-T_t) - \frac{1}{Pe_t}\frac{d^2T}{d\alpha^2} = \frac{C_{AO}\beta\tau}{\rho_o Cp_o}\left[(1-X)(k_1^*\Delta H_1^* k_3^*\Delta H_3)+\Delta H_2 k_2^* X'\right] \qquad (6,13)$$

$$\left.\begin{array}{ll} X - \frac{1}{Pe_g}\frac{dX}{d\alpha} = 0 & (6,14) \\ X' - \frac{1}{Pe_g}\frac{dX''}{d\alpha} = 0 & (6,15) \\ T - \frac{1}{Pe_t}\frac{dT}{d\alpha} = T_O & (6,16) \end{array}\right\} \quad \text{en } \alpha = 0^+$$

$$\left.\begin{array}{ll} \dfrac{dX}{d\alpha} = 0 & (6,17) \\[2ex] \dfrac{dX'}{d\alpha} = 0 & (6,18) \\[2ex] \dfrac{dT}{d\alpha} = 0 & (6,19) \end{array}\right\} \quad \text{en } \alpha = 1$$

25 - CHOIX DES CONDITIONS DE FONCTIONNEMENT

Il faut maintenant faire choix des grandeurs géométriques et des variables de contrôle. En principe, ce choix doit être dicté par une optimisation du réacteur, ce qui nous emmenerait trop loin alors qu'en fait, le but de cette étude, est de comparer le lit fixe et le lit fluidisé garni. En conséquence, dans la mesure du possible, nous nous tiendrons près des conditions de fonctionnement adoptées par FROMENT pour le lit fixe [1].

251 - Diamètre du grain

Choisissons des grains qui se fluidiseraient bien dans un garnissage dont la maille est de 1 mm :

$$dp = 300\ \mu$$

Ce choix est arbitraire.

252 - Vitesse du gaz

Pour pouvoir bénéficier d'un bon transfert de chaleur et d'un mélangeage du gaz plutôt faible, il est préférable de travailler à dix fois la vitesse minimale de fluidisation. Prenons donc $U = 10\ U_{mf}$. A l'annexe 6.3 , U_{mf} est calculé = 3,3 cm/s, donc :

$$U = 33 \text{ cm/s}$$

Par conséquent (voir annexe 6.3), la porosité du lit est $\varepsilon = 0,77$ et le nombre de Bodenstein

$$Bo = \frac{Udp}{D_g} = 0,038$$

253 - Temps de contact, longueur du réacteur

Choisissons la même valeur que FROMENT pour le rapport

$$\frac{\text{Masse de catalyseur}}{\text{Débit traité}} = \beta\rho_s \frac{L}{U}$$

Pour FROMENT, $\tau = L/U = 0,7$ s. Pour nous, il vient alors :

$$L = 1 \text{ m}$$

254 - Diamètre du réacteur

Arbitrairement, nous choisissons un diamètre de 5 cm, tel que des anneaux grillagés pourraient facilement s'y loger :

$$d_t = 5 \text{ cm}$$

255 - Température en amont

On choisit la même valeur que FROMENT :

$$T_o = 357°C$$

256 - Concentration en amont

Ce choix est maintenant critique. Si C_{AO} est pris trop fort, le transfert à la paroi peut être insuffisant pour évacuer la chaleur produite par la réaction. On a alors une surchauffe du réacteur (emballement) et si C_{AO} est pris trop faible, la chaleur produite par la réaction est trop faible pour porter les gaz à une température telle que la réaction soit assez rapide. Etant donnée la (relative) similitude entre nos équations et celles de FROMENT pour le lit fixe, nous posons arbitrairement que nous devons avoir le même rapport :

$$\frac{\text{Chaleur dégagée par la réaction par unité de longueur}}{\text{Chaleur évacuée aux parois par unité de longueur}} = R_c$$

Si nous supposons que dans, les deux cas, nous avons la même température, le numérateur de ce rapport doit être proportionnel à :

$$d_t^2 \beta C_{AO}$$

alors que son dénominateur est proportionnel à :

$$h d_t$$

c'est-à-dire que nous prenons la même valeur que FROMENT pour la quantité

$$R_c = \beta C_{AO} d_t / h$$

il vient pour nous :

$$C_{AO} = 10^{-6} \text{ mole/cm}^3$$

257 - Remarque

Les conditions de température et de concentration choisies sont probablement explosives. On peut,peut-être,remédier à cet inconvénient en réalisant l'injection d'O-xylène au sein même du lit fluidisé. Cela se fait déjà pour la synthèse de l'anhydride phtalique à partir du naphtalène et celle de l'acrylonitrile par le procédé SOHIO [9]. C'est là un avantage du lit fluidisé.

26 - ROLE EFFECTIF DU MELANGEAGE AXIAL DU GAZ

Dans les conditions ci-dessus, on trouve $Pe_g = 125$. Peut-on affirmer que dans notre cas, cette valeur est suffisamment grande pour qu'on puisse considérer que notre réacteur est "piston" ?

261 - Intégration dans le cas d'un réacteur isotherme

Si la température est constante, k_1^*, k_2^* et k_3^* le sont aussi et le système d'équations (6,11 et 6,12) peut-être résolu analytiquement. Il vient :

$$(1-X)_{\alpha=1} = \frac{4\ a\ e^{Pe_g/2}}{(a+1)^2 e^{aPe_g/2} - (a-1)^2 e^{-aPe_g/2}} \qquad (6,20)$$

$$X'_{\alpha=1} = \frac{K_2}{K_1-K_3}\left[\frac{4\ a\ e^{Pe_g/2}}{(a+1)^2 e^{aPe_g/2} - (a-1)^2 e^{-aPe_g/2}} - \frac{4\ a'e^{Pe_g/2}}{(a'+1)^2 e^{a'Pe_g/2} - (a'-1)^2 e^{-a'Pe_g/2}}\right] \qquad (6,21)$$

avec :

$$K_1 = \beta\tau(k_1^* + k_3^*) \qquad (6,22)$$

$$K_2 = \beta\tau k_1^* \qquad (6,23)$$

$$K_3 = \beta\tau k_2^* \qquad (6,24)$$

$$a = \left[1 + \frac{4K_1}{Pe_g}\right]^{1/2} \qquad (6,25)$$

$$a' = \left[1 + \frac{4K_3}{Pe_g}\right]^{1/2} \qquad (6,26)$$

On voit ici que les nombres K_1/Pe_g et K_3/Pe_g caractérisent l'effet de la diffusion du gaz sur le déroulement de la réaction. Lorsqu'ils sont nuls ($Pe_g = \infty$), le réacteur est piston, lorsqu'ils sont infiniment grands ($Pe_g = 0$) le réacteur est homogène.

On peut calculer que le rapport $4K_1/Pe$ reste inférieur à 5% tant que la température ne dépasse pas 400°C. Il vaut 3% pour T = 375°C. On peut considérer que nous sommes proche du régime piston. LEVENSPIEL [10] indique que dans ce cas, l'écart à l'écoulement piston peut s'écrire :

$$\frac{1-X}{(1-X)_{piston}} = 1 + \frac{(K_1)^2}{Pe_g}$$

à T = 375°C, le terme d'écart K_1^2/Pe_g est inférieur à 1 %.

Etant donnés les objectifs que nous nous sommes fixés, on peut dire que dans les conditions que nous avons choisies, le réacteur peut être considéré comme piston pour le gaz.

Nous pouvons donc écrire les équations du réacteur sous une forme simplifiée :

$$\frac{dX}{d\alpha} = \beta\tau(k_1^* + k_3^*)(1-X) \qquad (6,27)$$

$$\frac{dX'}{d\alpha} = \beta\tau(k_1^*(1-X) - k_2^* X') \qquad (6,28)$$

$$\frac{dT}{d\alpha} + Nut\,(T-T_t) - \frac{1}{Pe_t}\frac{d^2T}{d\alpha^2} = -\frac{C_{AO}\beta L}{\rho_o Cp_o U}\left[(1-X)(k_1^*\Delta H_1 + k_3^*\Delta H_3) + k_2^*\Delta H_2 X'\right] \qquad (6,29)$$

$$X = 0 \qquad (6,30)$$

$$X' = 0 \qquad (6,31) \qquad \text{en } \alpha = 0^+$$

$$T - \frac{1}{Pe_t}\frac{dT}{d\alpha} = T_0 \qquad (6,32)$$

$$\frac{dT}{d\alpha} = 0 \qquad (6,33) \qquad \text{en } \alpha = 1$$

Sans cette précieuse simplification, l'intégration numérique est difficile car on se heurte aux problèmes de divergence décrits par ARIS [11] : on est obligé de mener l'intégration "à rebours" (pour α décroissant de 1 à 0), avec un pas d'intégration petit (1/1000), et il faut de plus répéter un grand nombre de fois l'intégration pour pouvoir satisfaire aux conditions limites d'entrée et de sortie.

Grâce à cette simplification, la résolution numérique par la méthode de RUNGE-KUTTA de 4ème ordre dure moins de 3 minutes sur IBM 1800 avec un pas d'intégration assez grossier de 1/100.

3 - RESULTATS - DISCUSSION

Nous axons la discussion des résultats sur la comparaison entre le lit fixe et le lit fluidisé.

31 - PERFORMANCES

Le tableau ci-après montre qu'au point de vue conversion et sélectivité, nous obtenons sensiblement les mêmes résultats que FROMENT (ces derniers

sont estimés d'après les courbes données par sa publication [1]).

	X	X'	s = X'/X
Lit fixe	0,65	0,55	0,85
Lit fluidisé garni	0,67	0,57	0,85

Le tableau suivant permet de comparer les caractéristiques de deux réacteurs qui produiraient la même quantité d'anhydride phtalique, l'un en lit fixe, l'autre en lit fluidisé garni. Les unités sont arbitraires.

	Production	Surface au sol	Volume réacteur	Masse du catalys.	Débit gazeux	Perte de char.	Energie mécan.	Concent. sortie
Lit fixe	1	1	1	1	1	1	1	1
Lit fluidisé garni	1	1,62	0,65	0,25	0,21	0,09	0,02	4,65

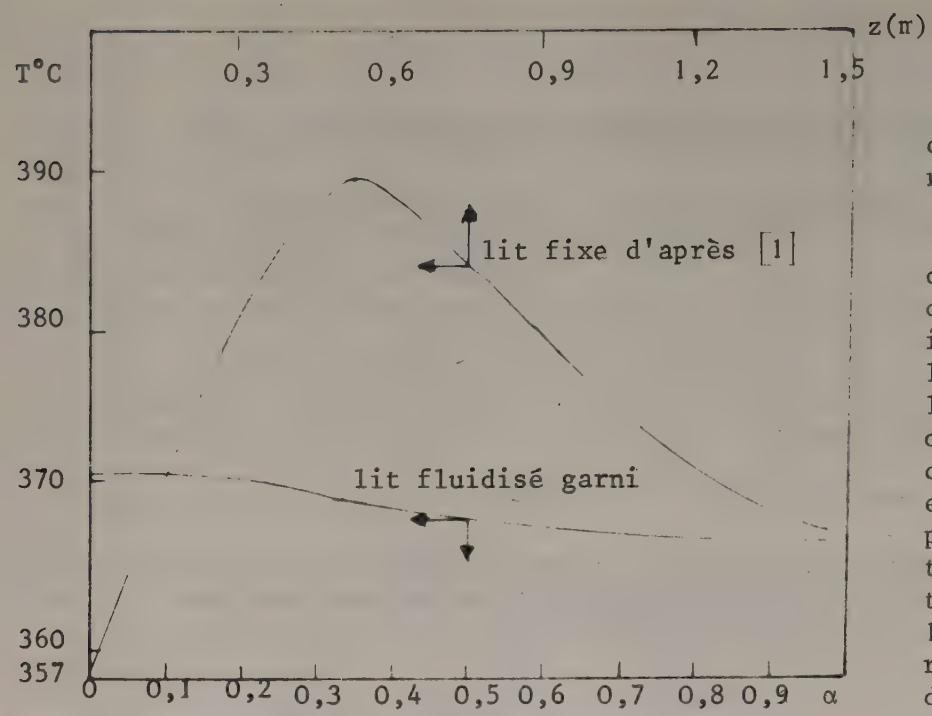
La perte de charge en lit fixe a été estimée d'après l'équation générale d'ERGUN, donnée par LEVA [12] et en lit fluidisé garni, en supposant que le solide est supporté entièrement par le gaz.

On voit que le lit fluidisé garni est perdant sur la surface au sol. Cela tient à la nécessité d'opérer à des vitesses de gaz plus faibles qu'en lit fixe. Par contre, on gagne considérablement sur :

- la masse de catalyseur : 4 fois moins,
- l'énergie mécanique de compression du gaz : 50 fois moins,
- le débit de gaz : 5 fois moins, d'où diminution du volume des appareils annexes (préchauffeur et séparateur) et de l'énergie à y apporter (puissance de préchauffe),
- la concentration de l'anhydride sortant : 4,5 fois plus forte ; son extraction sera donc facilitée.

32 - CONTROLE

L'effet de la conductibilité interne du lit sur le gradient de température est important, comme le montre le croquis 6.B ci-après, obtenu dans les



Croquis 6B - Profils de température

conditions exposées au paragraphe 25.

On voit que le profil de température est "ecrasé" dans le lit fluidisé garni, il n'y a que 3,5°C entre le point le plus froid et le point le plus chaud, lequel est situé à l'entrée du réacteur. Cet important effet de la conductibilité propre du lit fluidisé justifie a posteriori l'hypothèse exposé au paragraphe 18 d'uniformité de la température dans une section droite du réacteur.

Au contraire, en lit fixe, les gradients de température (tant radiaux qu'axiaux) sont très importants, ce qui le rend trè sensibble aux paramètres T_o et C_{AO}. Lorsque la température d'entrée passe de 357 à 360°C, le réacteur "s'emballe". En faisant varier nos conditions d'alimentation nous avons vérifié que le lit fluidisé garni était beaucoup moins sensible.
Sur le tableau 6.1, ΔT indique l'écart de température entre le point le plus chaud et le point le plus froid. Nous voyons que pour des écarts légers de température, le réacteur reste contrôlable. Les conditions de fonctionnement que nous avons initialement choisies (2ème ligne de ce tableau) sont assez éloignées des conditions d'emballement. La dernière ligne (C_{AO} = 1,7.10^{-6}, T_o = 357°C) en est proche : en alimentant à 3°C au dessus, le point chaud devenait très élevé.

C_{AO} moles/cm^3	T_O°C	X sortie	X' sortie	T_{O+}(°C) (point chaud)	ΔT°C
1,0.10^{-6}	355	0,632	0,540	366,7	3,8
1,0.10^{-6}	357	0,670	0,570	369,7	3,4
1,0.10^{-6}	360	0,715	0,602	374,3	6,3
1,2.10^{-6}	355	0,671	0,570	370,3	4,8
1,2.10^{-6}	357	0,703	0,593	373,9	7,1
1,2.10^{-6}	360	0,751	0,627	379,4	10,6
1,7.10^{-6}	357	0,823	0,682	400	25,3

Tableau 6.1 - Sensibilité du lit fluidisé garni

33 - DISCUSSION

A première vue, le lit fluidisé garni semblerait donc posséder de grands avantages sur le lit fixe, tant au point de vue prix de revient du produit qu'au point de vue contrôle du réacteur. En fait, il faut également tenir compte d'autres facteurs :

- Notre réacteur serait multitubulaire et la technologie serait au moins aussi compliquée que dans le cas du lit fixe. Rappelons que pour qu'il n'y ait pas d'explosion, nous sommes tenus d'avoir une alimentation séparée de l'O-xylène.

- Les conditions de fonctionnement choisies (paragraphe 25) ne sont pas optimales. Il n'est pas évident que dans des conditions effectivement optimales au point de vue prix de revient du produit, le contrôle soit aussi aisé.

Il reste néanmoins acquis que la conductibilité thermique interne a une grande influence. On peut envisager de l'utiliser de différentes manières :

- Si on augmente le diamètre du lit, on diminue la surface d'échange thermique et pour maintenir un flux de chaleur à la paroi intéressant, on peut abaisser la température du fluide de refroidissement. En fait, ce qui serait vraiment intéressant serait de pouvoir utiliser comme fluide de l'eau ou une huile et donc travailler avec une température de refroidissement de 100 à 150°C. Mais, le lit fluidisé aurait alors un grand diamètre (1 à 2 m) et il y aurait des gradients radiaux de température. La performance du réacteur pourrait baisser par suite des courants de convection et les problèmes de distribution des gaz seraient plus critiques.

- Un calcul rapide montre que dans le réacteur alimenté dans les conditions du paragraphe 25, il se dégage environ 50 cal/s et que le gaz n'en emmène par échauffement que 1,65 cal/s, soit 3,4 %. Tout le reste est évacué aux parois. Vu le "saut de température" à l'entrée du réacteur, on peut abaisser la température des gaz entrant et se rapprocher d'un fonctionnement autothermique. On gagne en puissance de préchauffe, mais le contrôle du réacteur peut être plus délicat : possibilité d'avoir des points de fonctionnement multiples et surtout impossibilité de contrôler la température par la paroi.

En fait, il serait plus intéressant de travailler dans un réacteur unique plutôt que dans un réacteur multitubulaire. Il faut alors opérer à très fortes vitesses, donc avec des grains beaucoup plus gros et dans un réacteur plus long. L'efficacité d'utilisation des grains pouvant être réduite, il n'y a plus nécessité qu'ils soient très poreux et on peut envisager un catalyseur plus dense et plus résistant, mieux adapté à la fluidisation dans un garnissage.

4 - CONCLUSION

Ce calcul montre que le lit fluidisé garni présente un grand nombre d'avantages sur le lit fixe, notamment il permet de produire de l'anhydride phtalique à un prix de revient bien moindre. A celà, il convient d'ajouter que les conditions choisies ici ne sont pas optimales.

Cet avantage provient essentiellement de la bonne conductibilité interne du lit et du bon transfert de chaleur à la paroi : nous avons calculé qu'il y a des faibles gradients de température dans le lit fluidisé garni. Ceci suggère d'autres dessins de réacteurs pouvant être plus économiques : utilisation de réacteurs de grands diamètres, alimentation de réactifs à plus basse température et à grande vitesse avec des grains plus gros.

Cette étude est restée théorique, s'appuyant sur les données de la littérature. Une expérimentation importante reste à faire, spécifique à chaque application envisagée. Ainsi, dans le cas de l'anhydride phtalique mise au point d'un catalyseur mécaniquement acceptable pour la fluidisation et surtout étude en maquette et en pilote, car seule l'expérimentation permettrait de vérifier notre modèle.

J.J. CARBERY |13| affirme qu'une remarque de RABELAIS "Je vais chercher un grand peut-être" vaut bien à ce dernier le titre de patron du génie de la réaction chimique.

BIBLIOGRAPHIE

[1] G.F. FROMENT
"Fixed bed catalytic reactor current design status"
I & EC 59 (1967), 18

[2] Y. YOUSFI
"Contribution à l'étude d'un réacteur à transport pneumatique. Hydrodynamique et transfert de chaleur"
Thèse de Doctorat, Université Nancy I, 1973

[3] A. ZOULALIAN
"Simulation d'un système de réactions consécutives exothermiques dans une cascade de réacteurs agités adiabatiques avec alimentation étagée".
Thèse de Doctorat, Université Nancy I, 1973

[4] W.H. PARK, C.E. CAPES et G.L. OSBERG
"Axial gas dispersion in a fluidised bed containing cylindrical screen packings"
Inst. Chem. Eng. Symp. Ser. 30 (1968), 140

[5] T. ISHII et G.L. OSBERG
"Effect of packing on the catalytic isomerization of cyclopropane in fixed and fluidized beds"
A.I.Ch.E.Jl. 11 (1965), 273

[6] S.C. JAIN et B.H. CHEN
"Heat transfer in a screen-packed fluidized bed"
Chem. Eng. Prog. Symp. Ser. 116 (1972), 97

[7] Y. YOUSFI
"Synthèse industrielle de l'anhydridre phtalique"
Thèse de Doctorat, Université Nancy I, 1973

[8] J. HERTEN et G.F. FROMENT
I et EC Proc. Des. & Devel. 7 (1968), 516

[9] P. GUIGON, F. COEURET et M. BERGOUGNOU
"Calcul d'un réacteur à lit fluidisé pour la production d'acrylonitrile"
CPIC, Nancy 1972

[10] O. LEVENSPIEL
"Chemical reaction engineering"
John Wiley, 1966

[11] R. ARIS
"Introduction to the analysis of chemical reactors"
Prentice Hall, 1965

[12] M. LEVA
"Fluidization"
McGrawHill, 1959

[13] J.J. CARBERRY
"Yield in Chemical reactor engineering"
I&EC 58 (1968), 40

Chaque partie de ce travail a révélé un aspect particulier du lit fluidisé garni :

L'analyse bibliographique de l'abondant travail des chercheurs Canadiens montre que le lit fluidisé garni a un comportement relativement bien plus simple que le lit fluidisé classique. Il donne lieu à une homogénéisation du lit, et les modèles représentant les processus de transfert de matière et de chaleur au sein du lit requièrent peu de paramètres.

Nos travaux expérimentaux mettent en évidence le rôle joué par les frottements grains-garnissage qui ont l'effet bénéfique d'abaisser la perte de charge totale. Dans certains cas, celle-ci peut même se limiter à celle due au garnissage : on a alors affaire à un "lit ruisselant". Par contre, un effet désavantageux de ces forces de friction est d'empêcher l'existence d'une relation unique entre la vitesse relative et l'expansion du lit, ce qui complique le calcul des lits fluidisés avec écoulement de solide.

Notre recherche des applications industrielles du lit fluidisé garni montre que celles-ci peuvent être très variées : transport pneumatique dense, triage des grains, réaction chimique. Dans ce dernier cas, il est avantageux d'opérer avec des grains de gros diamètres et à des vitesses de gaz élevées. L'atout principal du lit fluidisé garni est qu'il réunit les avantages du lit fixe (bonnes conversions) et ceux du lit fluidisé classique (bon contrôle thermique). Cependant, il ne faut pas oublier que le garnissage impose certaines contraintes technologiques tenant à sa solidité et à sa résistance chimique.

A notre avis, les travaux de recherche sur le lit fluidisé garni doivent maintenant s'orienter vers les études "à chaud", c'est-à-dire avec une réaction chimique, afin de vérifier les prévisions théoriques. Si celles-ci sont vérifiées, le lit fluidisé garni est en mesure d'étendre considérablement le champ d'application de la fluidisation et de donner un nouvel essor à celle-ci.

CONCLUSION GENERALE

NOMENCLATURE

Latine

Bo	Nombre de Bodenstein
C_i	Concentration molaire du constituant i
D_g	Coefficient de diffusion axiale du gaz
D_s	Coefficient de diffusion axiale du solide
D_t	Coefficient de diffusion axiale de la chaleur
D_i	Coefficient de diffusion du constituant i
F	Débit volumique du fluide
d_t	Diamètre de la virole du lit fluidisé
d_m	Longueur de la maille du grillage
d_f	Diamètre du fil du grillage
d_p	Diamètre de la particule
$\bar{d}_p$	Diamètre moyen des particules
d_{p10}	Diamètre correspondant à 10% de la répartition granulométrique en masse
F_{gs}	Force de friction volumique gaz-solide
F_{gp}	Force de friction volumique gaz-paroi et garnissage
F_{sp}	Force de friction volumique solide-paroi et garnissage
G	Débit volumique de gaz
g	Accélération de la pesanteur
H	Hauteur du lit fluidisé en expansion
H_o	Hauteur du lit fluidisé au repos
ΔH_q	Chaleur de la réaction
h	Coefficient de transfert de chaleur lit fluidisé-paroi
h_s	Coefficient de transfert de chaleur gaz-particule
J	Flux volumique total
j_r	Flux de derive $= \varepsilon\beta U_r$
K_{gp}	Coefficient de transfert de matière gaz-particule
k^*	Constante cinétique en s^{-1}
L	Longueur du réacteur
M	Masse totale du lit fluidisé
Nut	Nombre d'Unité de Transfert de chaleur
Nu	Nombre de Nusselt

n	Exposant de ε dans la loi de RICHARDSON et ZAKI et dans celle de CAPES et McILHINNEY
ΔP	Perte de charge totale du lit fluidisé
Pe_g	Nombre de PECLET du gaz
Pe_t	Nombre de PECLET thermique
q_{diff}	Flux diffusionnel de chaleur
Re	Nombre de REYNOLDS
Re_t	Nombre de REYNOLDS de la particule en chute libre
r_i	Vitesse d'apparition (ou de disparition) du constituant i rapportée à l'unité de masse du catalyseur
r_q	Vitesse de la réaction q rapportée à l'unité de masse du catalyseur
S	Débit volumique total du solide
Sc	Nombre de Schmidt
T	Température du gaz en °K
T_t	Température de la paroi en °K
U	Vitesse "en fût vide" du gaz
U_b	Vitesse ascensionnelle d'une bulle
U_f	Vitesse interstitielle du fluide
U_g	Vitesse du gaz
U_s	Vitesse du solide
U_r	Vitesse relative des deux phases
W	Vitesse "en fût vide" du solide
X_i	Conversion du constituant i
X'	Conversion de l'O-xylène en anhydride phtalique
z	Hauteur dans le lit fluidisé

Grecque

α	Cote réduite dans le lit fluidisé
α_t	Coefficient de diffusion de la chaleur
β	Concentration volumique du solide (ou rétention)
β_g	Contribution du gaz à l'équilibre du lit
β_ℓ	Rétention limite
β_p	Contribution de paroi et du garnissage à l'équilibre du lit
$\beta_{\ell\ell}$	Rétention statique
γ	Rapport U_{mfg}/U_{mf}
ε	Degré de vide du lit

ε_s	Porosité du solide
ε'	Valeur théorique de ε en appliquant la loi de CAPES et McILHINNEY
η	Efficacité d'utilisation du catalyseur
Θ	Tortuosité du grain
λ	Conductibilité thermique axiale du lit fluidisé
μ	Viscosité du fluide
ν_{iq}	Coefficient stoechiométrique du constituant i dans la réaction q
ρ_g	Densité du gaz
ρ_s	Densité du solide
τ	Temps de passage
ϕ_s	Facteur de forme du grain
Φ_i	Critère de THIELE
χ	Rapport ε_s/Θ
Ω	Surface de la section droite de la virole

Indices

i	du constituant
mf	au minimum de fluidisation dans un lit classique
mfg	au minimum de fluidisation dans un lit garni
q	de la réaction q
o	à l'entrée, en amont du réacteur
o+	à l'entrée dans le réacteur.

ANNEXES

ANNEXE 3.1

DETAILS COMPLEMENTAIRES SUR L'APPAREILLAGE EXPERIMENTAL

1 - LES COLONNES

11 - DIMENSIONS

La colonne n° 1 d'étude en lit stagnant (figure 3.1) est haute de 4,50 m avec un diamètre intérieur de 92 mm.

Le rapport maximal hauteur/diamètre autorisé pour le lit fluidisé garni est donc de 49. La colonne n°2 (figure 3.2) a le même diamètre, mais sa hauteur est ramenée à 3,50 m en raison de l'exiguité relative du local. Elle est garnie d'anneaux grillagés depuis le haut de la vanne pneumatique VP1 jusqu'au bas de VP2, sur une longueur de 2,80 m.

Le diamètre des lits fluidisés A et D est de 40 cm, leur hauteur respectivement 40 et 30 cm. Dans le premier, la plaque poreuse de distribution est une plaque de polyéthylène fritté (VYON), dans le second un fritté en bronze. Des hublots permettent l'observation visuelle de l'intérieur des viroles.

Entre les vannes pneumatiques VP3 et VP4, le sas a une hauteur de 1,10 m et un diamètre intérieur de 92 mm.

12 - ALIMENTATIONS EN AIR

Pour la colonne n°1, nous disposons de deux alimentations possibles. La première, la moins usitée, provient de l'air du réseau interne du laboratoire, détendu de 7 à 3 bar dans un détendeur-régulateur, puis détendu dans un robinet de réglage à aiguille. La deuxième est un surpresseur rotatif (ROOTS n° 1) tournant à 2860 tours/minute et pouvant débiter 80m^3/h sous 0,5 bar. On règle le débit dans la colonne en laissant échapper un peu d'air en amont.

Cette même installation sert à alimenter la colonne n°2 à l'entrée E1. Un autre surpresseur (ROOTS n°2) assure l'alimentation en E2. Il peut fournir jusqu'à 60 m^3/h sous 0,4 bar et le débit est réglé par un variateur de vitesse télécommandé par un servomoteur FU.

13 - VANNES PNEUMATIQUES

L'installation n°2 nécessite quatre vannes à passage intégral sur le circuit de solide: deux sur la colonne proprement dite, servant à mesurer la rétention de solide et deux sur le sas. Les vannes à déformation élastique (DOSA-

PRO) nous ont semblé les plus commodes. Leur fermeture est réalisée en appliquant,entre le corps de vanne et le manchon élastique cylindrique, une pression d'air comprimé (pris sur le réseau) : le manchon s'écrase et ferme hermétiquement le passage (figure A.3.1). Un ennui : le volume balayé par le manchon impose un "à coup" sur le débit moyen du gaz.

14 - HUMIDIFICATION DE L'AIR

Lorsque cela est nécessaire, nous humidifions l'air du transport pneumatique par un système déjà utilisé dans une étude précédente [1]. Le degré hygrométrique doit être maintenu entre 60 et 95 %. Un hygromètre à point de rosée AQMEL, type HCP1S, permet ce contrôle.

15 - SAS

La pression dans le bac D n'est pas forcément égale à celle du bac A. Il peut s'en suivre une fluctuation du débit de gaz dans la colonne B, au moment de l'ouverture VP4. Pour cette raison, nous avons installé un système permettant d'équilibrer les pressions, juste avant l'ouverture de VP4 (figure A.3.2).

16 - SEPARATION GAZ-SOLIDE

On réalise la séparation gaz-solide du transport pneumatique dans un appareil type "cyclone" (figure A.3.3). Ce dernier fonctionne de manière satisfaisante avec les grains utilisés et quelqu'en soit le débit.

Tous les échappements d'air sont équipés de filtres en papier, dont le seuil de filtration est de 3μ. Ils doivent être périodiquement dépoussiérés afin d'assurer un fonctionnement régulier de l'appareil.

2 - MESURES

21 - PRESSIONS

Les manomètres sont équipés de suiveurs de niveau SEFRAM type SN25 et SN50 (figure A.3.4) dont le principe de fonctionnement est le suivant : un chariot mobile se positionne automatiquement au niveau du ménisque de liquide grâce à une cellule photorésistante couplée à un servomoteur ; ce chariot est solidaire du curseur d'un potentiomètre linéaire, aux bornes duquel on applique une tension constante. La différence de tension lue entre le curseur et une borne du potentiomètre est liée linéairement à la hauteur du ménisque. Nous nous sommes assurés de cette linéarité par un étalonnage. Un voltmètre numérique donne une mesure facile et rapide des tensions.

22 - DIAPHRAGMES

Les diaphragmes hors normes sont étalonnés en débit massique en fonction de $\sqrt{\rho_o \Delta H}$, où ρ_o est la densité du gaz en amont et ΔH la pression différentielle au diaphragme.

Dans l'appareil n°2, les débits de gaz en E1 et en S1 peuvent être du même ordre de grandeur. Aussi, les diaphragmes DE et DS sont-ils usinés de la même façon. Mais leur installation est légèrement différente (notamment, la longueur de section rectiligne de part et d'autre du diaphragme n'est pas la même) et il peut s'en suivre une légère erreur systématique sur les débits mesurés et une grosse erreur sur leur différence, qui seule nous intéresse. Aussi, avons-nous pris la précaution de les étalonner l'un par l'autre, en fermant le sas et les vannes VP1 et VP2. De cette façon, tout le gaz arrivant en E1 passe en S1. On reporte sur un graphique $y_e = \sqrt{\rho_o \Delta H}$ en E1 en fonction de $y_s = \sqrt{\rho_o \Delta H}$ en S1. De cette façon, durant le fonctionnement normal de l'appareil, si le débit passant en E1 est :

$$G = Ay_e$$

on calcule la différence entre les débits en E1 et S1 par

$$G = A(y_e - y_{e*})$$

où $y_e{}^*$ est déterminé à partir de y_s dans le graphique d'étalonnage.

Cette précaution est superflue lorsque $\Delta G/G$ est assez grand ou lorsqu'il y a trop de fluctuations de ΔH, mais elle utile lorsqu'on travaille en lit lâche dilué, les débits étant alors bien stables et ΔG relativement faible .

BIBLIOGRAPHIE

[1] Y. YOUSFI
"Contribution à l'étude d'un réacteur à transport pneumatique hydrodynamique et transfert de chaleur"
Thèse de Doctorat, Université Nancy I, 1973

ANNEXE 4.1 — LE MODELE SIMPLE DU "FLUX DE DERIVE"

Le modèle simple du "Flux de dérive" exposé par WALLIS [1], permet de rendre compte de l'existence du lit lâche, du lit dense et de l'engorgement dans certaines hypothèses.

1 - EXISTENCE D'UNE RELATION UNIVOQUE ENTRE β et U_r

11 - HYPOTHESES

Nous supposons avoir affaire à un système fluidisé au sens d'ELGIN [2] : chaque phase n'est soumise qu'à trois types de force :

- son poids
- la pression de la phase continue
- la force de friction exercée par l'autre phase, en raison du mouvement relatif

On ne tient donc pas compte des forces de frictions avec les parois ou avec le garnissage.

Nous supposons en outre que le système est homogène, c'est-à-dire que la rétention β y est uniforme.

12 - BILAN DE FORCES

Ecrivons le bilan des forces dans une section droite de la colonne.

Sur le fluide :

$$0 = -\rho_f \varepsilon \Omega dz - dP\Omega\varepsilon + F_{fs}\Omega dz \qquad (A.4.1)$$

Sur le solide :

$$0 = -\beta\rho_s \Omega dz - dP\Omega\beta - F_{sf}\Omega dz \qquad (A.4.2)$$

F_{fs} est la force de friction exercée par le fluide sur le solide, par unité de volume de colonne et F_{sf} la force de friction exercée par le solide sur le fluide. D'après la loi de l'action et de la réaction, $F_{fs} = -F_{sf}$ et en éliminant cette grandeur entre les équations (A.4.1) et (A.4.2), on trouve :

$$-\frac{dp}{dz} = \beta\rho_s g + \varepsilon\rho_f g \qquad (A.4.3)$$

Cette équation signifie que le gradient de pression est celui d'un fluide au repos , de densité égale à la densité moyenne du milieu fluidisé. Elle peut s'écrire :

$$-\frac{dp}{dz} + \rho_f g = \beta(\rho_s - \rho_f)g \qquad (A.4.4)$$

Sous une forme différentielle, cette équation exprime que :

(Perte de charge) = (Poids apparant du solide par unité de section)

qui est la définition traditionnelle de la fluidisation.

13 - RELATION ENTRE U_r et β

Une autre combinaison de (A.4.1) et (A.4.2) nous donne

$$F_{s\ell} = \beta(1-\beta)\ (\rho_s-\rho_f)g \qquad (A.4.5)$$

$F_{s\ell}$ est la force résultant du mouvement relatif des deux phases. Elle est fonction donc de la vitesse relative U_r, de l'aire interfaciale a et aussi de la disposition géométrique de la phase dispersée dans la phase continue.

L'aire interfaciale, dans le cas où la phase dispersée est un solide possédant une certaine distribution granulométrique, est égale à :

$$a = \beta/\phi\overline{dp}$$

où $\overline{dp}$ est la moyenne en surface des diamètres de particules et ϕ le facteur de forme [3].

Admettons que la disposition des particules dans l'espace soit aléatoire, alors, pour un système fluide-solide donné,

$$F_{s\ell} = \text{fonction } (U_r \text{ et } \beta \text{ seulement})$$

L'équation (A.4.5) montre alors qu'il existe une relation univoque entre U_r et β . U_r est la"variable clef" du système.

2 - CAS DU GAZ SOLIDE

21 - RELATION ENTRE U_r et β

Les systèmes gaz-solide sont généralement hétérogènes, c'est-à-dire qu'on ne peut plus considérer que la concentration β y est uniforme dans l'espace et dans le temps. Les bilans de forces (A.4.1) et (A.4.2) doivent être

écrits différemment. Nous devons considérer les moyennes des grandeurs sur une section Ω et dans le temps :

$$\langle X \rangle = \frac{1}{T} \int_o^T \frac{1}{\Omega} \iint_\Omega X \, ds \, dt$$

où T est le laps de temps suffisamment grand.

Les équations (A.4.1) et (A.4.2) doivent donc s'écrire :

$$0 = - \rho_f \langle \varepsilon \rangle \, \Omega dz - \langle \varepsilon dP \rangle \Omega + \langle F_{fs} \rangle \Omega dz \qquad (A.4.6)$$

$$0 = - \rho_s \langle \varepsilon \rangle \, \Omega dz - \langle \varepsilon dP \rangle \Omega + \langle F_{sf} \rangle \Omega dz \qquad (A.4.7)$$

On trouve facilement l'équivalent de l'équation (A.4.4).

$$- \frac{\langle dP \rangle}{dz} + \rho_f g = \langle \beta \rangle \, (\rho_s - \rho_g) g \qquad (A.4.8)$$

Mais, on ne peut pas trouver l'équivalent de l'équation (A.45) et donc, par ce raisonnement, on ne peut démontrer l'existence d'une courbe unique vitesse relative en fonction de concentration.

Il n'en reste pas moins vrai que la vitesse relative joue un rôle fondamental et on peut affirmer que le gradient de pression est décroissant dans le sens de la vitesse relative. Ceci explique les curieux profils de pression obtenus par certains auteurs sur des lits en sédimentation [4, 5].

3 - LE MODELE DU "FLUX DE DERIVE"

31 - DEFINITIONS

Soient W et U les flux volumiques spécifiques des phases solide et fluide (en valeur algébrique). Le flux total est :

$$J = W + U \qquad (A.4.9)$$

Définissons le "flux de dérive" (traduction de "drift flux")

$$j_r = \beta \varepsilon U_r \qquad (A.4.10)$$

On montre facilement que :

$$W = \beta J - j_r$$

$$\text{et} \quad U = \varepsilon J + j_r$$

WALLIS [1] compare j_r à un flux de diffusion qui se superpose au flux total J. De même, on peut écrire la rétention :

$$\beta = \frac{W}{J}\left(1 + \frac{j_r}{W}\right) \qquad (A.4.11)$$

et la densité moyenne du milieu

$$\rho_m = \frac{W\rho_s + U\rho_f}{J} + (\rho_s - \rho_f)\frac{j_r}{J} \qquad (A.4.12)$$

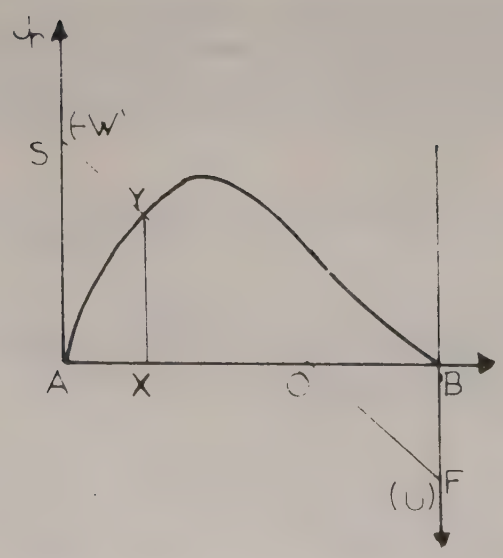
Dans les deux expressions (A.4.11) et (A.4.12), il apparaît un terme d'"écoulement homogène" avec un terme correctif ou un terme additionnel fonction du rapport du flux de dérive au flux des composants.

32 - ASPECT PRATIQUE : POINTS DE FONCTIONNEMENT

Dans le cas où U_r est lié de manière univoque à β, j_r est lui-même fonction univoque de β et possède alors un aspect pratique intéressant. Une interprétation graphique permet de rendre compte du fonctionnement du système.

On a évidemment :

$$j_r = \beta U - \varepsilon W \qquad (A.4.13)$$



Reportons - W sur l'axe β=0 et U sur l'axe β=1. En appliquant le théorème de THALES sur le schéma ci-contre, on voit que :

$$\frac{\overline{OX}}{\overline{XY}} = \frac{\overline{OA}}{\overline{AS}} = \frac{\overline{OB}}{\overline{BF}}$$

Donc :

$$\frac{-\overline{OX} + \overline{OB}}{\overline{BF} - \overline{XY}} = \frac{-\overline{OA} + \overline{OB}}{-\overline{AS} + \overline{BF}}$$

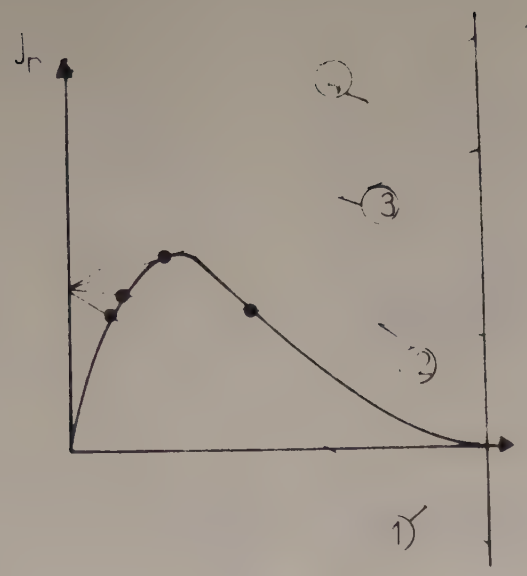
c'est à dire :

$$\frac{1 - \beta}{U - j_r} = \frac{1}{W - U}$$

qui donne :

$$j_r = \beta U - \varepsilon W$$

qui est bien l'équation (A.4.13) et donc le point Y est bien le point de fonctionnement de notre système.



Il est alors évident qu'à co-courant (1) il y aura toujours au moins un point de fonctionnement possible, alors qu'à contre-courant, il y en a soit deux (cas 2), éventuellement confondus à l'engorgement (cas 3), soit aucun (cas 4).

Ce raisonnement vaut pour tous les systèmes diphasiques admettant une courbe unique U_r en fonction de β. C'est le cas en particulier des systèmes:

- liquide-solide
- liquide-liquide [6]
- gaz-liquide (parfois, il vaut mieux utiliser a à la place de β [7]).

BIBLIOGRAPHIE

[1] G.B. WALLIS
"One dimensional two phase flow"
Mc Graw-Hill, 1969

[2] J.C. ELGIN
"Mechanism of vertical-moving fluidised systems"
A.I.Ch.E.Jl 3(1957), 63

[3] D. KUNII et O. LEVENSPIEL
"Fluidization engineering"
John Wiley, 1969

[4] A.A.H. DRINKENBURG
"Gas transfer in fluidized bed"
Thèse, Eindhoven, 1970

[5] L.S. LEUNG et L.A. WILSON
"Downflow of solids in standpipes"
Powd. Technol. 7 (1973), 343

[6] M. PERRUT
"Extraction liquide-liquide. Hydrodynamique et transfert de matière dans les colonnes à pulvérisation"
Thèse de Doctorat, Université Nancy I, 1972

[7] A. ABERGEL
"Hydrodynamique et transfert de matière dans les colonnes à pulvérisation gaz-liquide"
Thèse de Doctorat, Université Nancy I, 1974

ANNEXE 4.2

CONTRE-COURANT GAZ-SOLIDE ET INSTABILITES

On fait tomber "en pluie" un débit donné S de solide à contre-courant d'un débit G de gaz initialement petit. Au fur et à mesure que G croît, la concentration β ne cesse de croître, mais le système ne peut rester constamment homogène.

1 - LA CONCENTRATION CRITIQUE est définie par ZENZ [1,2] comme la concentration à partir de laquelle la distance interparticulaire est telle qu'il y a une interférence entre les particules de nature à provoquer "l'avalanche" des grains les uns sur les autres. Cela revient à dire que la concentration critique ne dépend directement ni de S, ni de G. En fait, cette façon de voir n'est qu'une première approximation et on sait maintenant que la concentration critique dépend de la vitesse du gaz [3]. Quoiqu'il en soit, ZENZ affirme que lorsque la concentration dans le lit "en pluie" atteint cette valeur critique, on arrive au "point d'engorgement (flooding) du lit lâche à contre-courant" [1]. Il y a donc selon lui simultanéité de l'engorgement et de l'instabilité.

2 - Selon WILHELM et VALENTINE [4], en faisant croître G, on ferait passer la concentration par un maximum, puis en augmentant encore G, on obtiendrait le refoulement du solide hors de la colonne, c'est-à-dire l'engorgement. Il y a toujours simultanéité de l'engorgement et de l'instabilité, mais il est surprenant de voir la concentration passer par un maximum.

3 - Avec des systèmes liquide-solide agrégatifs (il suffit que la densité du solide soit suffisamment grande), PRICE et coll [5] ont observé que le solide tombe en states et l'une de leur figure indique que le bouchonnage se produit pour des concentrations inférieures à la concentration d'engorgement.

4 - En fait des difficultés expérimentales viennent perturber l'observation de ces phénomènes. ZENZ [6] précise que les fines particules ont tendance à remonter avec le gaz et PRICE et coll ont dû transformer la géométrie de leur colonne pour obtenir un fonctionnement stable. Les mesures de WILHELM et VALENTINE sont très criticables, la zone de contre-courant ayant un diamètre de 10 cm et une hauteur de 33,5 cm, pour des grains de 9 mm de diamètre et ils ont peut-être mesuré un "effet de bout".

5 - De toutes façons, on ne peut que constater la rareté des données dans ce domaine et le flou des informations fournies par la bibliographie. Il est difficile de se faire une idée précise.

BIBLIOGRAPHIE

[1] F.A. ZENZ
"Visualizing gas-solid dynamics in catalytic processes"
Petr. Ref. 32 (1953), 123

[2] F.A. ZENZ et D.F. OTHMER
"Fluidization and Fluid-particle systems"
Reinhold 1960

[3] Y. YOUSFI
"Contribution à l'étude d'un réacteur à transport pneumatique
Hydrodynamique et transfert de chaleur"
Thèse de Doctorat, Université Nancy I, 1973

[4] R.H. WILHELM et S. VALENTINE
"The fluidized bed. Transition state in the vertical pneumatic
transport of particles"
I & EC 43 (1951), 1199

[5] B.G. PRICE, L. LAPIDUS et J.C. ELGIN
"Mechanics of vertical moving fluidized systems
II - Application to countercurrent operation"
A.I.Ch.E.Jl 5 (1959), 93

[6] F.A. ZENZ
"Two phase fluid-solide flow"
I & EC 41 (1949), 2801

ANNEXE 4.3 — ETUDE D'UN LIT PISTONNANT

Pour comparer lit garni et lit non garni, nous avons étudié dans la colonne 1 un lit fluidisé d'alumine 1. Etant donné le rapport hauteur/diamètre de ce lit, il y a pistonnage.

1 - PERTE DE CHARGE et VITESSE MINIMALE

Nous avons mesuré les pertes de charge en faisant décroître les vitesses. La figure (A.4.1) nous montre que l'on trouve la même vitesse minimale que PATUREAUX [1] dans un lit non bouchonnant des mêmes grains.

2 - EXPANSION

Sur la figure (A.4.2), nous voyons que la hauteur du lit fluidisé (mesurée au maximum des fluctuations) est une fonction linéaire de la vitesse. Ce fait peut-être interprété par le modèle de MATSEN et coll. [2]. Ces auteurs partent des deux hypothèses suivantes :

- la bulle-piston a le diamètre de la colonne et se déplace à la vitesse

$$U_b = 0{,}35\sqrt{gd_t}$$

- tout le gaz exédant le minimum requis pour la fluidisation passe sous forme de bulles.

Ils arrivent à une loi simple de l'expansion

$$\Delta = \frac{H - H_o}{H_o} = \frac{U - U_{mf}}{0{,}35\sqrt{gd_t}}$$

Cette droite semi-théorique est également tracée sur la figure A.4.2 et nous la voyons en bon accord avec nos résultats.

BIBLIOGRAPHIE

[1] T. PATUREAUX
"Contribution à l'étude du mouvement des particules d'un lit fluidisé gaz-solide"
Thèse Docteur-Ingénieur, Université Nancy I, 1972

[2] J.M. MATSEN, S. HOVMAND et J.F. DAVIDSON
"Expansion of fluidized bed in slug flow"
Chem. Eng. Sci. 24 (1969), 1743

ANNEXE 4.4. ETUDE D'UN LIT LACHE NON GARNI

Ces mesures ont été faites avec le sable, uniquement en lit lâche. En effet, le caractère pistonnant du lit dense empêche toute mesure de concentration. Mais le lit lâche ayant une très faible concentration (≠ 1%), il devient impossible d'y faire une mesure sérieuse de la concentration. Aussi devons-nous faire l'hypothèse, raisonnable ici, que tous les grains reposent sur le gaz : de cette façon, on peut calculer β :

$$\beta = \beta_g$$

Le but de ces mesures était de rechercher une courbe vitesse relative-concentration. On voit sur la figure (A.4.3) qu'il est impossible de trouver une belle courbe : on a un "nuage" de points.

Plusieurs explications peuvent être fournies à cet insuccès :

- la colonne est trop courte, les grains ne sont pas à leur vitesse d'équilibre. Signalons que le profil de pression était le plus souvent rectiligne.

- effets électrostatiques : en humidifiant l'air du transport, on parvient à les éliminer (en apparence). Il y a (figure A.4.3) une légère amélioration des points.

- rôle de la turbulence du fluide : pour en tenir compte, YOUSFI [1] faisait intervenir le nombre de Reynolds du gaz :

$$Re_g = \frac{\rho_g U_g D}{\mu}$$

dans ces correlations, que nos résultats ne vérifient pas.

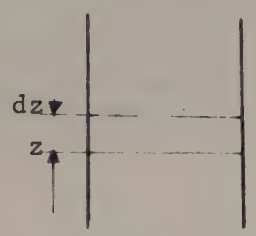
BIBLIOGRAPHIE

[1] Y. YOUSFI
"Contribution à l'étude d'un réacteur à transport pneumatique. Hydrodynamique et transfert de chaleur"
Thèse de Doctorat, Université Nancy I, 1973

ANNEXE 6.1

MODELE DU REACTEUR A LIT FLUIDISE GARNI - ECRITURE

Les hypothèses du modèle sont exposées au chapitre 6. Nous détaillons ici l'écriture des bilans, qui conduit aux équations de base décrivant le réacteur dans le cas le plus général.



Trois types de bilans sont nécessaires :

- bilan de matière sur chaque constituant
- bilan d'énergie sur le gaz
- bilan thermique du grain

Ces bilans sont faits sur une tranche du réacteur d'épaisseur dz, située à la cote z. On suppose qu'il y a n composants intervenant dans R réactions indépendantes, l'indice i étant réservé aux composants et q aux réactions.

1 - BILAN DE MATIERE

Pour chaque constituant, on a, en régime permanent :

$$\begin{bmatrix}\text{flux molaire}\\ \text{sortant à } z+dz\end{bmatrix} - \begin{bmatrix}\text{flux molaire}\\ \text{sortant à } z\end{bmatrix} = \begin{bmatrix}\text{flux molaire}\\ \text{né par réaction}\end{bmatrix}$$

ce qui s'écrit, grâce aux hypothèses :

$$d\phi_i = U\frac{dC_i}{dz} - D_g\frac{d^2C_i}{dz^2} = \beta\rho_s r_i \qquad (A.6.1)$$

où r_i est la vitesse d'apparition du constituant i, qui peut être exprimée comme :

$$r_i = \sum_q \nu_{iq} r_q$$

où ν_{iq} est le coefficient stoechiométrique du composant i dans la réaction q et r_q la vitesse de cette réaction.

La stoechiométrie permet de définir l'avancement X_q de la réaction q et la conversion X_i du constituant i. On sélectionne un constituant parmi les autres : mettons le constituant 1.

$$C_i = C_{io} + C_{1,o}\sum_q \nu_{iq} X_q$$

$$\text{où} \qquad C_i = C_{io} + C_{1,o} X_i \qquad (A.6.2)$$

avec $X_i = \sum_q \nu_{iq} X_q$

L'équation (A.6.1) devient alors :

$$d\phi_i = U \frac{dX_i}{dz} - D_g \frac{d^2X_i}{dz^2} = \frac{\beta\rho_s}{C_{i,o}} r_i \qquad (A.6.3)$$

2 - BILAN THERMIQUE DU GAZ

Appliquons simplement le premier principe de la thermodynamique [1], en écrivant qu'en régime permanent :

$$\begin{bmatrix}\text{Flux d'énergie}\\ \text{sortant à la}\\ \text{cote } z + dz\end{bmatrix} - \begin{bmatrix}\text{Flux d'énergie}\\ \text{sortant à la}\\ \text{cote } z\end{bmatrix} = \begin{bmatrix}\text{Flux d'énergie}\\ \text{sortant par}\\ \text{la paroi}\end{bmatrix}$$

Nous séparons les différents termes :

- Flux d'énergie entrant à la cote z :

Ici aussi, conformément aux hypothèses, il y a un terme de convection (énergie portée par le gaz), auquel s'ajoute un terme de diffusion :

$$q_e = \Omega\left[\sum_i \phi_i h_i - \lambda \frac{dT}{dz}\right]$$

où h_i est l'enthalpie spécifique molaire du constituant i. En admettant que la chaleur spécifique molaire C_{mi} du constituant i est constante et en prenant une température de référence T_r, nous écrivons :

$$q_e = \Omega\left[\sum_i \phi_i (h_{ir} + C_{mi}(T-T_r))\right]$$

où h_{ir} est l'enthalpie spécifique du constituant i à la température T_r

- Flux d'énergie sortant à la cote z + dz

$$q_s = \Omega\left[\sum_i (\phi_i + d\phi_i)(h_i + dh_i) - \lambda\left(\frac{dT}{dz} + d\left(\frac{dT}{dz}\right) dz\right)\right]$$

que nous développons comme précédemment :

$$q_s = \Omega\left[\sum_i (\phi_i + d\phi_i)(h_{ir} + C_{mi}(T+dT-T_r)) - \lambda\left(\frac{dT}{dz} + \frac{d^2T}{dz^2} dz\right)\right]$$

- Flux de chaleur évacuée à la paroi

$$dq_t = h(\pi d_t)(T-T_t)dz$$

où d_t est le diamètre du tube et h le coefficient de transfert de chaleur à la

paroi. Nous préférons écrire :

$$dq_t = \frac{4\Omega}{d_t} h(T-T_t)dz$$

- Bilan global

$$q_s - q_e = dq_t, \text{ soit :}$$

$$\sum_i \left[h_{ir} d\phi_i + C_{mi}\left((T-T_r)d\phi_i + \phi_i dT\right)\right] + \frac{4h}{d_t}(T-T_t)dz - \lambda \frac{d^2T}{dz^2} dz = 0$$

En exprimant ϕ_i et $d\phi_i$ par (A.6.3), il vient :

$$\sum_i \left[\rho_s \beta \sum_q \nu_{iq} r_q (h_{ir} + C_{mi}(T-T_r))\right] + \frac{dT}{dz} \sum_i \left[\phi_{io} + C_{1,o} \sum_q \nu_{iq}\left(UX_q - D_g \frac{dX_q}{dz}\right)\right] C_{mi}$$
$$-\lambda \frac{d^2T}{dz^2} + \frac{4h}{dt}(T-T_t) = 0$$

Remarquons que, par définition :

$\sum_i \nu_{iq} h_{ir} = (\Delta H)_q$ = chaleur de la réaction q dans l'état de référence

$\sum_i \nu_{iq} C_{mi} = (\Delta C_m)_q$ = variation de chaleur spécifique de la réaction q.

$\sum_i C_{mi} C_{io} = \rho_o Cp_o$ = chaleur spécifique volumique du gaz

En fait, si nous supposons que ΔH_q ne varie pas avec la température, il est facile de montrer que $(\Delta C_m)_q = 0$. Il vient :

$$\frac{dT}{dz} U\rho_o Cp_o + \beta\rho_s \sum_q r_q \Delta H_q = -\frac{4h}{d_t}(T-T_t) + \lambda \frac{d^2T}{dz^2} \qquad (A.6.4)$$

3 - CONDITIONS AUX LIMITES

31 - Conditions à l'entrée du réacteur

Du fait de la diffusion du gaz et de la chaleur, il n'y a pas de continuité de concentration et de température à l'entrée du réacteur. Mais on peut écrire la conservation de la matière et de l'énergie. Il vient :

$$UC_{io} = UC_{io^+} - D_g \left(\frac{dC_i}{dz}\right)_{o^+} \qquad (A.6.5)$$

et

$$U\rho_o Cp_o (T_{o^+} - T_o) - \lambda \frac{dT}{dz} = 0 \qquad (A.6.6)$$

32 - Conditions à la sortie du réacteur

Si nous supposons que les gradients de température et de concentration à la sortie du réacteur sont très faibles, nous pouvons appliquer le raisonne-

ment de WEHNER et WILHELM [2] et retrouver les conditions limites de DANCKWERTS [3].

$$\left.\begin{aligned} \frac{dX_i}{dz} &= 0 \\ \frac{dT}{dz} &= 0 \end{aligned}\right\} \text{ à } z = L \qquad \begin{aligned} &(A.6.7) \\ &(A.6.8) \end{aligned}$$

4 - MISE SOUS FORME ADIMENSIONNELLE

En résumé, nous voyons que les équations (A.6.4) et (A.6.5) forment un système de R+1 équations différentielle admettant 2n+2 conditions limites (A.6.7) et (A.6.8). Nous les écrivons sous la forme :

$$\frac{dX_i}{d\alpha} - \frac{1}{Pe_g}\frac{d^2X_i}{d\alpha^2} = \frac{\tau\beta\rho_s}{C_{1,o}} r_i \qquad (A.6.9)$$

$$\frac{dT}{d\alpha} + Nut(T-T_t) - \frac{1}{Pe_t}\frac{d^2T}{d\alpha^2} = \frac{\tau C_{1,o}\beta}{\rho_o Cp_o}\sum_q r_q \Delta H_q \qquad (A.6.10)$$

$$\left.\begin{aligned} X_i - \frac{1}{Pe_g}\frac{dX_i}{d\alpha} &= 0 \\ T - \frac{1}{Pe_t}\frac{dT}{d\alpha} &= T_o \end{aligned}\right\} \text{ en } \alpha = 0^+ \qquad \begin{aligned} &(A.6.11) \\ &(A.6.12) \end{aligned}$$

$$\left.\begin{aligned} \frac{dX_i}{d\alpha} &= 0 \\ \frac{dT}{d\alpha} &= 0 \end{aligned}\right\} \text{ en } \alpha = 1 \qquad \begin{aligned} &(A.6.13) \\ &(A.6.14) \end{aligned}$$

avec :

$\alpha = z/L$ = cote réduite

$Nut = 4hL/\rho_o Cp_o Ud_t$ = Nombre d'Unité de Transfert de chaleur

$Pe_t = \rho_o Cp_o UL/\lambda$ = Nombre de Peclet thermique

$Pe_g = UL/D$ = Nombre de Peclet du gaz

$\tau = L/U$ = "temps de passage"

BIBLIOGRAPHIE

[1] J. VILLERMAUX
"Introduction à la théorie des réacteurs chimiques"
Cours ENSIC, Nancy 1970

[2] J.F. WEHNER et R.H. WILHELM
"Boundary conditions of flow reactor"
Chem. Eng. Sci. 6 (1968), 89

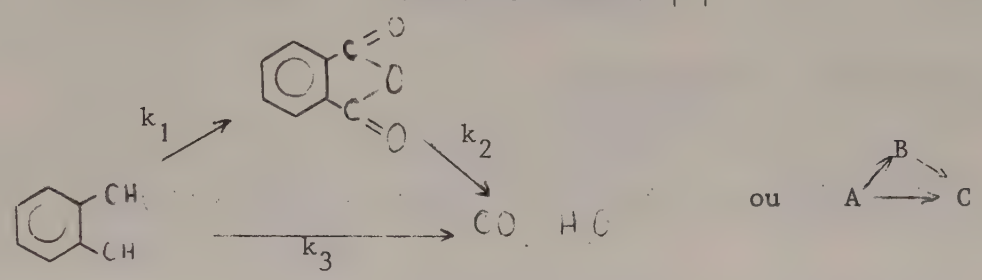
[3] P.V. DANKWERTS
"Continuous flow sytems. Distribution of residence times"
Chem. Eng. Sci. 2 (1953), 1

ANNEXE 6.2. CINETIQUE PHYSIQUE ET CHIMIQUE DU GRAIN

Le but de ces calculs est de montrer comment interviennent les processus diffusionnels sur la cinétique physique et chimique du grain. Nous traitons en exemple le cas de l'anhydride phtalique.

1 - CINETIQUE DE L'ACTE CHIMIQUE PUR

Nous nous fions au schéma de FROMENT |1|



avec :

$$r_1 = k_1 p_A p_{o2}$$

$$r_2 = k_2 p_B p_{o2} \qquad \text{en moles/h/g de catalyseur}$$

$$r_3 = k_3 p_A p_{o2}$$

où les p_i sont les pressions partielles des composants. Les constantes cinétiques ne dépendent que de la température :

$$\left.\begin{aligned} k_1 &= \exp\left[-\frac{27000}{RT} + 19{,}837\right] \\ k_2 &= \exp\left[-\frac{31000}{RT} + 21{,}86\right] \\ k_3 &= \exp\left[-\frac{28600}{RT} + 18{,}98\right] \end{aligned}\right\} \text{moles/atm}^2\text{/h/g}$$

où les énergies d'activation sont en calories.

Nous cherchons à simplifier ces constantes cinétiques en les exprimant en s^{-1} :

$$\left.\begin{aligned} r_1 &= k_1^* C_A \\ r_2 &= k_2^* C_B \\ r_3 &= k_3^* C_A \end{aligned}\right\} \text{moles/s/g}$$

où les C_i sont les concentrations molaires. Si l'O-xylène est suffisamment dilu dans l'air , et à la pression atmosphérique, il vient :

$$\left.\begin{aligned} k_1^* &= 4{,}74.10^{-3}\ T\ k_1 \\ k_2^* &= 4{,}74.10^{-3}\ T\ k_2 \\ k_3^* &= 4{,}74.10^{-3}\ T\ k_3 \end{aligned}\right\} \quad \text{en } s^{-1}$$

Etant donné l'importance des énergies d'activation , ces constantes croissent très rapidement avec la température.

Les chaleurs de réaction sont :

$$\Delta H_1 = -\ 307 \text{ Kcal/mole}$$
$$\Delta H_2 = -\ 1090 \text{ Kcal/mole}$$

2 - CONDITIONS D'HYDRODYNAMIQUE

Estimons les vitesses maximales de fluidisation par la relation de KOZENY-CARMAN, telle qu'elle est donnée par KUNII et LEVENSPIEL [2]

$$U_{mf} = 0{,}59.10^{-3}\ \frac{dp^2 \rho_s g}{\mu}$$

Posons que la densité du catalyseur est $\rho_s = 2 g/cm^3$ et la viscosité de l'air à 350°C est $\mu = 3{,}12.10^{-4}$ poises. On peut estimer les vitesses terminales U_t d'après une méthode de calcul donnée par KUNII et LEVENSPIEL [2] avec une clef graphique :

$d_s(\mu)$	100	200	300	400	500
U_{mf}(cm/s)	0,38	1,5	3,3	6,0	9,0
U_t (cm/s)	18,6	55,7	99	139	149

Les vitesses de gaz sont choisies dans l'intervalle (U_{mf}, U_t).

Nous examinons maintenant successivement les transferts de chaleur et de matière autour et dans le grain. En général, la résistance principale à l'intérieur du grain est due au transfert de matière alors que la résistance principale dans le film entourant le grain est due au transfert de chaleur [3].

3 - TRANSFERT DE CHALEUR DANS LE GRAIN

Pour un grain de catalyseur sphérique, un bilan de matière à l'in-

térieur du grain permet de caractériser la compétition diffusion-réaction chimique à l'aide du critère de THIELE [4].

$$\Phi_A = \left[\frac{(k_1^* + k_3^*) d_s^2}{4D_A} \right]^{1/2}$$

D_A est la diffusivité interne du constituant A, que l'on relie à sa diffusivité moléculaire D_m par :

$$D_A = \chi D_m$$

où

$$\chi = \frac{\varepsilon_s}{\Theta} = \frac{\text{Porosité du grain}}{\text{Tortuosité du grain}}$$

ARIS [5] affirme que $0{,}05 < \chi < 0{,}95$

A l'instar de YOUSFI [6], nous calculons D_m par une loi en $T^{3/2}$ en prenant $D_m = 0{,}061$ cm^2/s à 0°C, d'après CRESWELL [7].

Le critère de THIELE permet de calculer l'efficacité d'utilisation du grain, définie comme :

$$\eta = \frac{\text{Vitesse de la réaction avec freinage diffusionnel}}{\text{Vitesse de la réaction sans freinage diffusionnel}}$$

avec la formule :

$$\eta = \frac{3}{\Phi_A} \left[\frac{1}{\text{th}\Phi_A} - \frac{1}{\Phi_A} \right]$$

Les figures (A.6.1) et (A.6.2) montrent Φ_A et η en fonction de la température. On voit qu'en dessous de 480°C, le grain sera toujours utilisé à mieux que 95%. D'après FROMENT [1], la température d'un lit contrôlé ne dépasse pas 410°C. Nous concluons qu'il n'y a pas lieu de tenir compte de la diffusion des gaz dans les grains.

4 - TRANSFERT DE MATIERE AUTOUR DU GRAIN

Nous admettons que le transfert de matière dans la couche diffusionnelle autour du grain est bien cractérisé par le coefficient K_{gp} donné par BEEK [8], établi en liquide-solide :

$$K_{gp} \varepsilon (Sc)^{2/3} / \mu = 0{,}66 . \varepsilon^{1/2} (U d_p / \nu)^{-1/2}$$

où Sc = nombre de Schmidt du gaz $\neq$ 2. En prenant $\varepsilon = 0{,}7$, il vient

$$K_{gp} = 0{,}345 (U/d_p)^{1/2} \quad \text{en cm/s}$$

Le bilan de matière dans la couche limite s'écrit simplement pour le constituant A :

$$(k_1^* + k_3^*) C_{Ao} \frac{\pi d_p^3}{6} = K_{gp} (C_A - C_{AS}) \pi d_p^2$$

soit :

$$\frac{C_A - C_{AS}}{C_{AS}} = \frac{k_1^* + k_3^*}{2{,}07} \; d_p \left(\frac{d_s}{\mu}\right)^{1/2}$$

Les courbes $(C_A - C_{AS})/C_{AS}$ sont tracées sur la figure (A.6.3) pour $U = U_{mf}$ et $U = 10\ U_{mf}$ et pour différents diamètres. On voit que pour $T < 480°C$, $\Delta C_A/C_A$ reste inférieur à 5%. Nous dirons donc que la diffusion externe ne joue pas sur l'équation cinétique globale.

5 - TRANSFERT DE CHALEUR AUTOUR DU GRAIN

Le problème du transfert de chaleur gaz-grain en lit fluidisé étant difficile et ayant été peu étudié, nous sommes amenés à faire deux hypothèses :

- On suppose d'abord que le grain est isotherme, c'est-à-dire que "l'étape ralentissante" du transfert de chaleur est à l'extérieur du grain. Ceci est vrai si le nombre de BIOT est inférieur à 0,25 :

$$Bi = \frac{h_s d_p}{2\lambda_s}$$

où h_s = coefficient de transfert de chaleur autour du grain

λ_s = conductibilité thermique du grain

Ce fait est généralement admis pour des grains suffisamment petits.

- Comme nous opérons dans un lit relativement dilué ($\varepsilon > 0{,}7$), nous supposons que l'on peut appliquer la relation citée par GEL'PERIN et EINSTEIN [9], établie pour une sphère isolée :

$$Nu = 2 + 0{,}74\ Re^{1/2}\ Pr^{1/2}$$

où Nu = nombre de Nusselt = $h_s d_s/\lambda_g$, λ_g étant la conductibilité thermique du gaz. On trouve en fait Nu = 2, ce qui correspond à un transfert purement diffusif, sans mouvement de fluide autour du grain. En prenant $\lambda_g = 9.10^{-5}$ cal/°C.s.cm, on trouve :

$$h_s \neq 10^{-2} \text{cal/°C.s.cm}^2$$

Etablissons le bilan thermique du grain dans le cas le plus défavorable où la réaction 2 est infiniment rapide : il y a alors dégagement de chaleur maximum :

$$T - T_s = \Delta T = \frac{(k_1^* + k_3^*)(-\Delta H_3)}{6h_s} C_{Ao} d_s$$

Les courbes ΔT en fonction de T sont données sur la figure (A.6.4) et nous voyons que pour des températures inférieures à 450°C, ΔT ne dépasse pas 1°C, ce qui n'affecte pas de manière sensible les constantes de vitesse.

Remarque : Ce calcul est assez approximatif. GELPERIN et EINSTEIN [9] et d'autres auteurs [10] rapportent que le Nombre de Nusselt dans les lits fluidisés peut-être bien plus faible que pour une "bille" isolée. Nous pensons que cela tient au fait que le solide y reste sous forme d'une émulsion dense,ce qui n'est pas notre cas puisque nous sommes dans une fluidisation "quasi-particulaire". Ajoutons que le bilan thermique du grain a été calculé dans un cas très défavorable.

Quoiqu'il en soit, nous admettrons que le gaz et le grain sont à la même température.

6 - CONCLUSION

L'étape ralentissante est donc la seule cinétique chimique et la loi de FROMENT ne doit pas être modifiée.

BIBLIOGRAPHIE

[1] J.F. FROMENT
"Fixed bed catalytic reactors current design states"
I & EC 59 (1969), 18

[2] D. KUNII et O. LEVENSPIEL
"Fluidization engineering"
John Wiley 1969

[3] J.F. FROMENT
"Phenomènes de transfert associés aux réactions hétérogènes catalysées"
Cours CPIC, Nancy 1973

[4] P. LE GOFF
"Diffusion de matière et de chaleur dans les solides réactifs poreux"
Cours ENSIC, Nancy 1971

[5] R. ARIS
"Introduction to the analysis of chemical reactors"
Prentice Hall, 1965

[6] Y. YOUSFI
"Contribution à l'étude d'un réacteur à transport pneumatique - Hydrodynamique et transfert de chaleur"
Thèse de Doctorat, Université Nancy I, 1973

Y. YOUSFI
Rapport interne au laboratoire

[7] D.L. CRESWELL et W.R. PATERSON
"Mathematical modelling of the exothermic packed bed reactor application to the O-xylene partial oxydation"
Chem. Eng. Sci. 25 (1970) 1405

[8] W.J. BEEK
"Mass transfer in fluidized beds"
In "Fluidization", Chap. 9, Academic Press 1971

[9] N.I. GELPERIN et V.G. EINSTEIN
"Heat transfer in fluidized bed"
in "Fluidization", Chap. 10, Academic Press 1971

[10] P. WUITHIER et G. MONNOT
"Transfert de chaleur"
in "Rafinage et Génie Chimique", Chap. 4
Editions Technip 1965

ANNEXE 6.3

ESTIMATION DES PROPRIETES DU LIT FLUIDISE GARNI

Les paramètres à calculer sont ε(porosité du lit), h(coefficient de transfert de chaleur à la paroi), Pe_g(nombre de Peclet du gaz) et α_t(diffusivité axiale de la chaleur).

1 - POROSITE DU LIT, ε

On se sert de la loi de CAPES et McILHINNEY [1] :

$$U/U_i = \varepsilon^n$$

Les valeurs de U_i et n peuvent être calculées grâce aux expressions (2,3) et (2,4)

En fait, selon CAPES et McILHINNEY, cette loi n'est valable que pour des diamètres de grains > 500µ. Cependant, pour des diamètres plus petits et des taux d'expansion > 0,3 (soit $U > 5U_{mf}$), les courbes log U en fonction de log ε sont linéaires [1,2] et nous admettrons donc que cette loi reste valable.

Le tableau suivant montre que les valeurs de n et U_i pour des grains dont la densité est de $2g/cm^3$, la température du gaz étant de 350°C

d_p (µ)	100	200	300	400	500
n	3,98	3,97	3,95	3,93	3,91
U_i cm/s	17,9	53,5	92,2	134	143

Les courbes ε en fonction de U sont données pour différents diamètres sur la figure (A.6.5) et nous voyons, par exemple, que pour d_s = 300µ, à $U = 10\ U_{mf}$ = 33 cm/s, on a ε = 0,77.

2 - NOMBRE DE PECLET DU GAZ

L'expression du nombre de Peclet du gaz est :

$$Pe_g = UL/D_g$$

En fait, PARK et coll [2] donnent le nombre de BODENSTEIN

$$Bo = Ud_p/D_g$$

en fonction de ε, pour les trois diamètres de grains 120µ, 290µ, 470µ et pour une maille du garnissage de 14 "Tyler mesh" (soit d_m = 1,17 mm). Pour nos diamètres de grains variant de 100 à 500µ, nous avons donc :

$$2 < \frac{d_s}{d_m} < 10, \text{ ce qui est correct.}$$

Pour calculer les nombres de BODENSTEIN de nos grains, il faut utiliser la méthode d'interpolation appliquée avec succès par PARK et coll. pour rendre compte des résultats d'ISHII et OSBERG [3] : on construit le réseau Pe_g en fonction de d_s, avec ε pour paramètre, puis on retrace le réseau Pe_g en fonction de ε avec nos valeurs de d_s pour paramètre (figures (A.6.6) et (A.6.7)).

Application, pour d_s = 300µ, avec ε = 0,77, on trouve Bo = 0,038.

3 - DIFFUSIVITE DE LA CHALEUR

Rappelons la correlation de JAIN et CHEN [4]

$$\alpha_t = 0{,}216.10^5 (G-G_{mf})^{5/3}$$

où G est le débit massique du gaz en $g/cm^2.s$ et α_t la diffusivité thermique en cm^2/s.

Pour des grains de 300µ, à 10 U_{mf} et à 350°C, on trouve :

$$\alpha_t \neq 14 \text{ cm}^2/\text{s}$$

Il est intéressant de constater que cette diffusivité de la chaleur est du même ordre de grandeur que celle que KANG et OSBERG [5] ont mesurée. D'après une de leur figure, on trouve à U/U_{mf} = 10 :

$$D_s = 22 \text{ cm}^2/\text{s}$$

4 - COEFFICIENT DE TRANSFERT DE CHALEUR A LA PAROI

Des petites études du transfert de chaleur en lit fluidisé garni [6,7], on peut retenir qu'à 10 fois la vitesse minimale de fluidisation, le coefficient de transfert de chaleur à la paroi est du même ordre de grandeur qu'en lit classique. Bien qu'il existe de nombreuses correlations pour calculer ce dernier, on n'en peut utiliser aucune , car elles nécessitent la connaissance de données que nous n'avons pas.

On doit se contenter d'un ordre de grandeur grossier : h doit être compris entre 250 et 500 $Kcal/m^2.h.°C$ [8]. Posons donc :

$$h = 360 \text{ Kcal/h.m}^2.°\text{C} = 10^{-2} \text{ cal/s.cm}^2.°\text{C}$$

BIBLIOGRAPHIE

[1] C.E. CAPES et A.E. McILHINNEY
"The pseudo-particulate expansion of screen packed gas fluidized beds"
A.I.Ch.E.Jl 14 (1968), 217

[2] W.H. PARK, C.E. CAPES et G.L. OSBERG
"Axial gas dispersion in fluidized bed containing cylindrical screen-packing"
Inst. Chem. Eng. Symp. Ser. 30 (1968), 140

[3] T. ISHII et G.L. OSBERG
"Effect of packing on the catalytic isomerization of cyclopropane in fixed and fluidized beds"
A.I.Ch.E.Jl 11 (1965), 279

[4] S.C. JAIN et B.H. CHEN
"Heat transfer in screen-packed fluidized bed"
Chem. Eng. Prog. Symp. Ser. 116 (1972), 97

[5] W.K. KANG et G.L. OSBERG
"Longitudinal particle mixing in a screen-packed gas-solid fluidized bed"
Can. J. Chem. Eng. 44 (1966), 162

[6] J.P. SUTHERLAND, G. VASSILATOS, H. KUBOTA et G.L. OSBERG
"The effect of packing on a fluidized bed"
A.I.Ch.E.Jl 9 (1963), 437

[7] C.E. CAPES, J.P. SUTHERLAND et A.E. McILHINNEY
"An experimental study of the effect of dump packing on wall to fluidized bed heat transfer"
Can. J. Chem. Eng. 46 (1966), 473

[8] M. BERGOUGNOU
"Fluidisation - Bases théoriques - Calcul des réacteurs industriels"
Cours CPIC - Nancy 1972

FIGURES

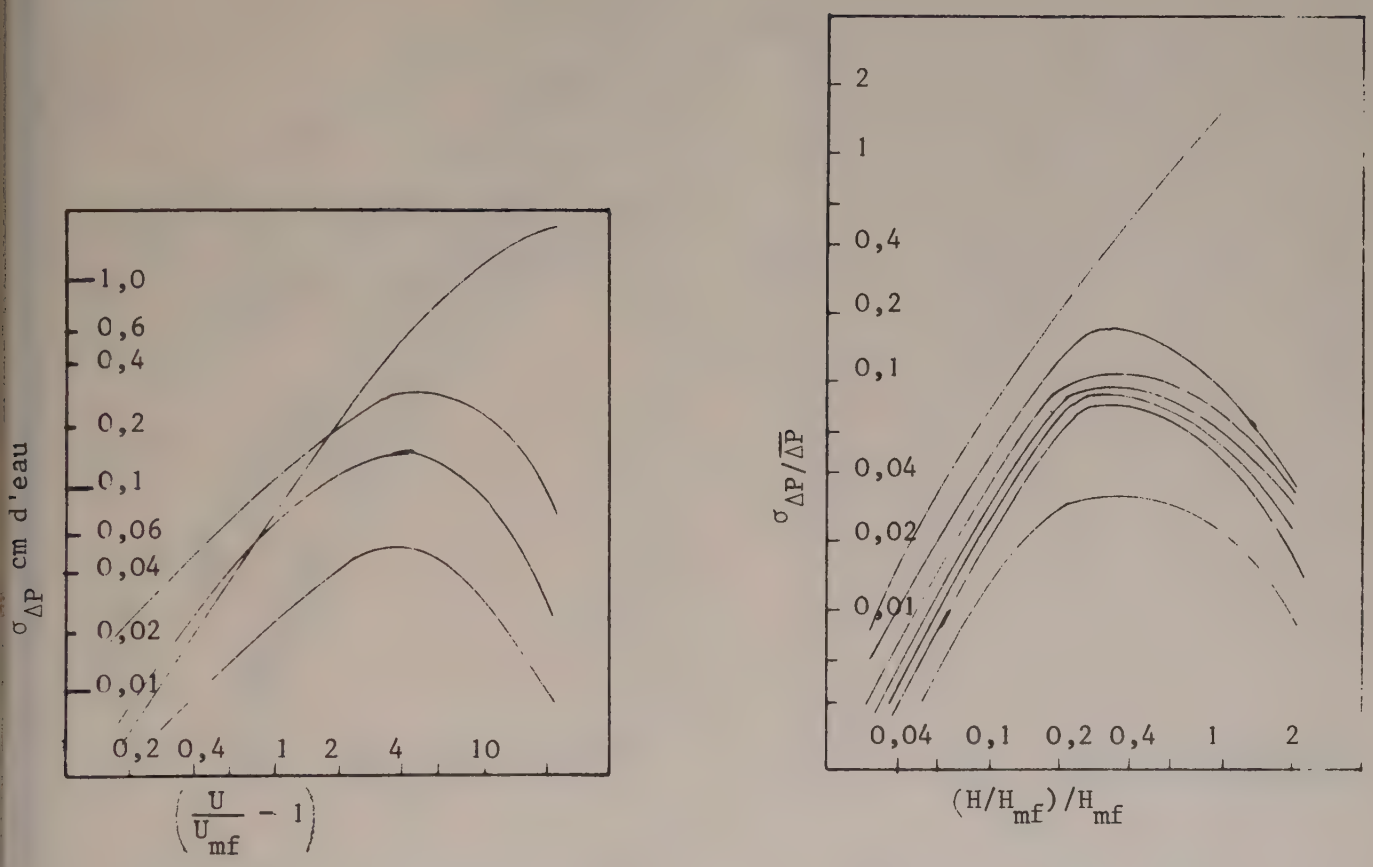
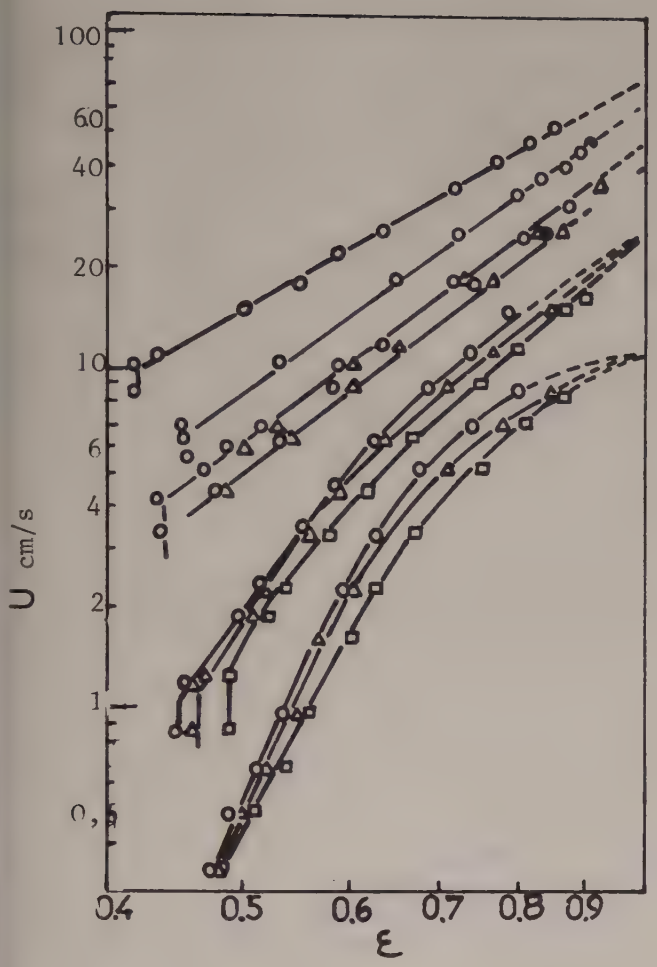
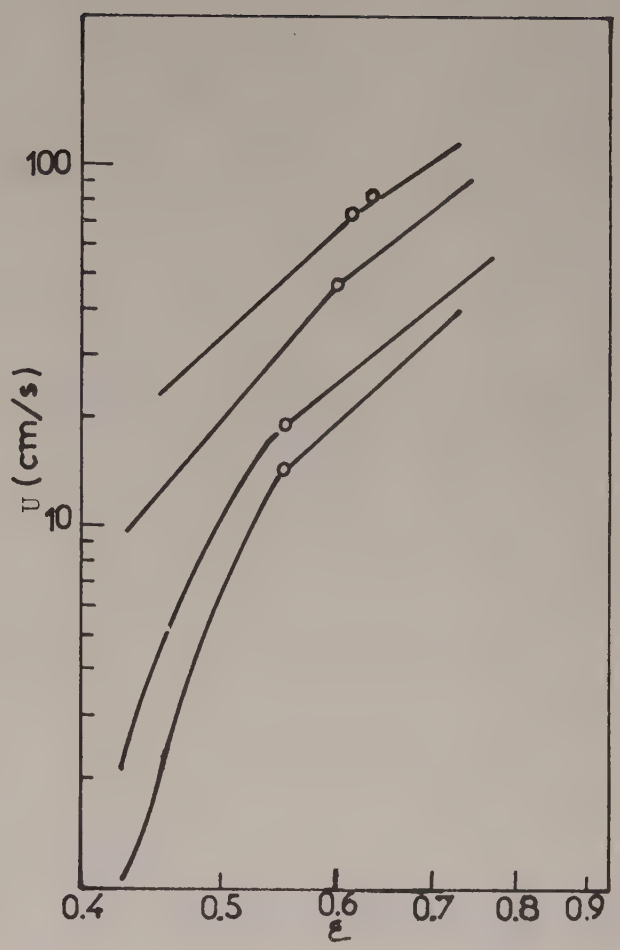


Fig. 2.1 – Fluctuations de pression dans des lits fluidisés garnis (d'après la littérature)

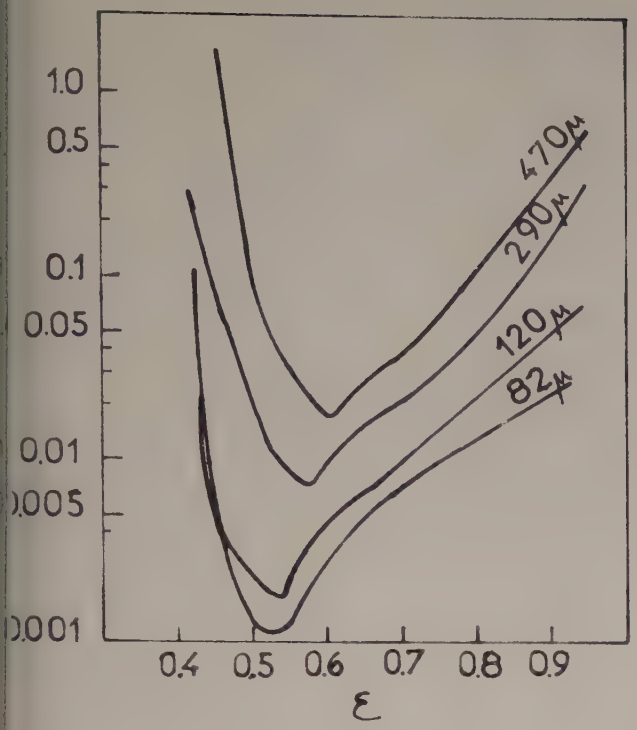


Résultats de CAPES et Mc ILHINNEY

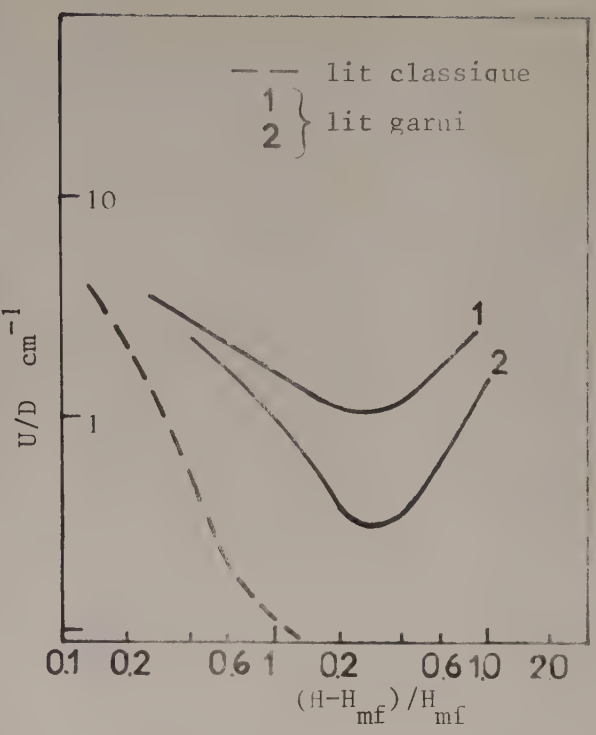


Résultats de PARCK et coll.

Fig. 2.2 - COURBES D'EXPANSION DE LA LITTERATURE

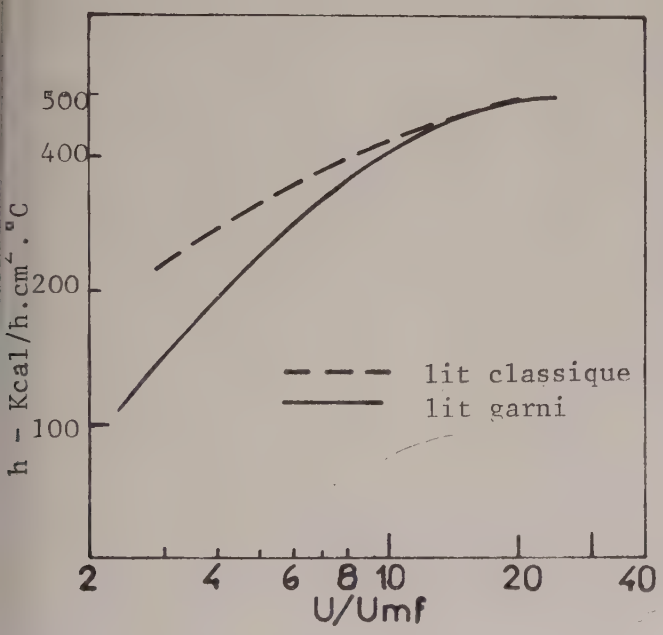


Mélangeage axial

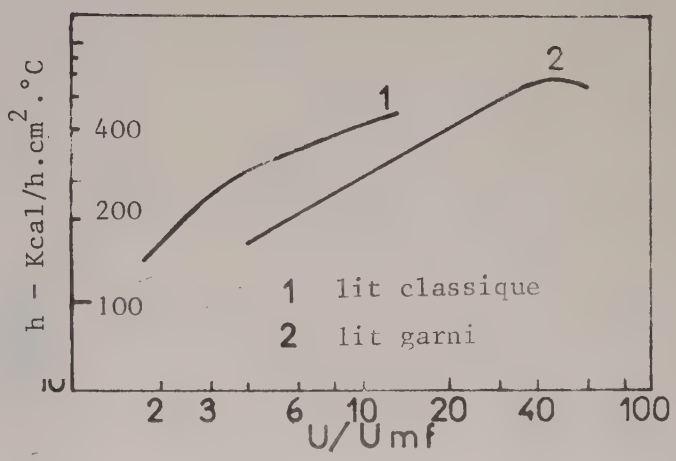


Mélangeage radial

Fig. 2.3 - ETUDES DU MELANGEAGE DU GAZ



Résultats de SUTHERLAND et coll.



Résultats de CAPES et coll.

Fig. 2.4 - TRANSFERT DE CHALEUR EN LIT FLUIDISE GARNI

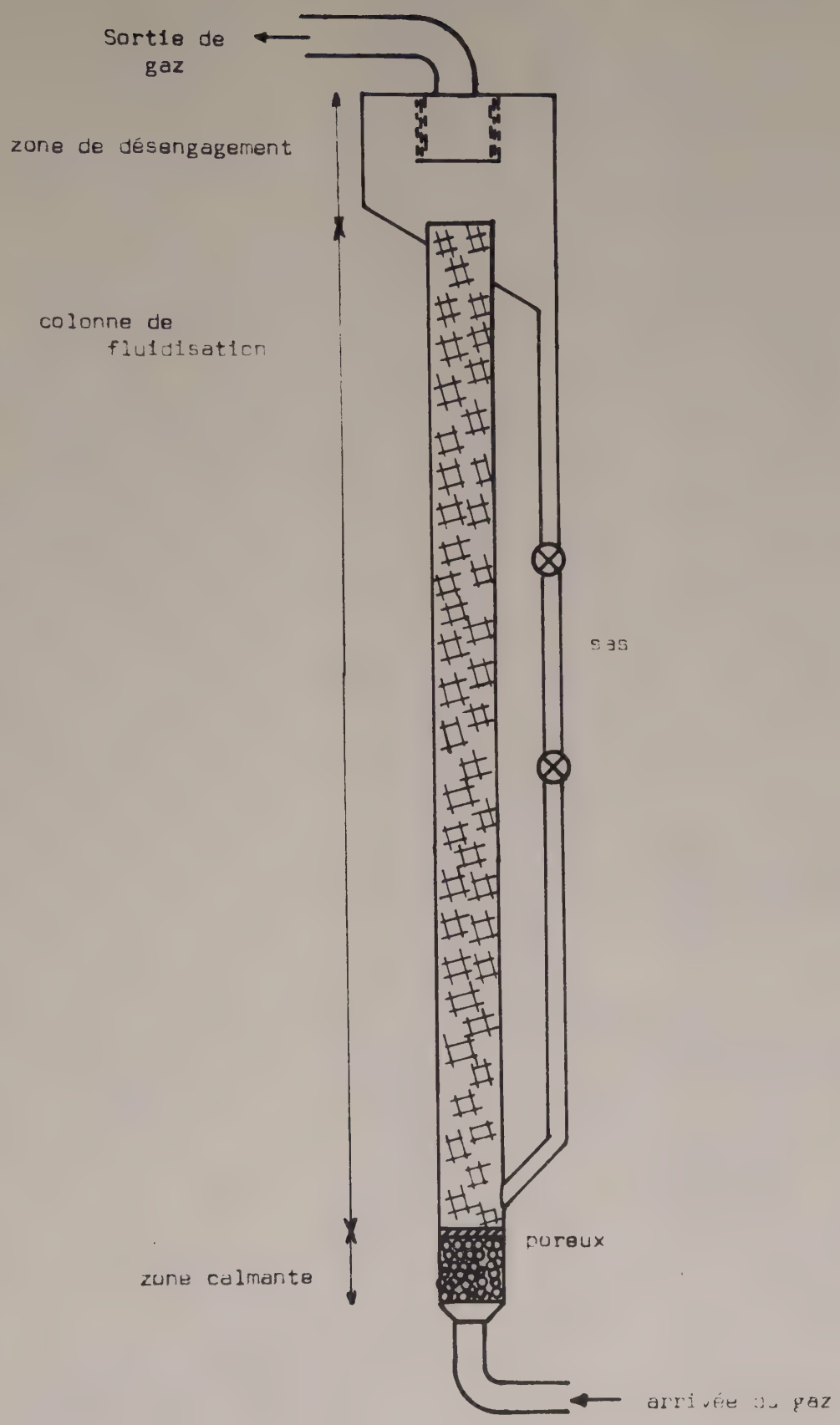


Fig. 3.1 - Appareil n° 1

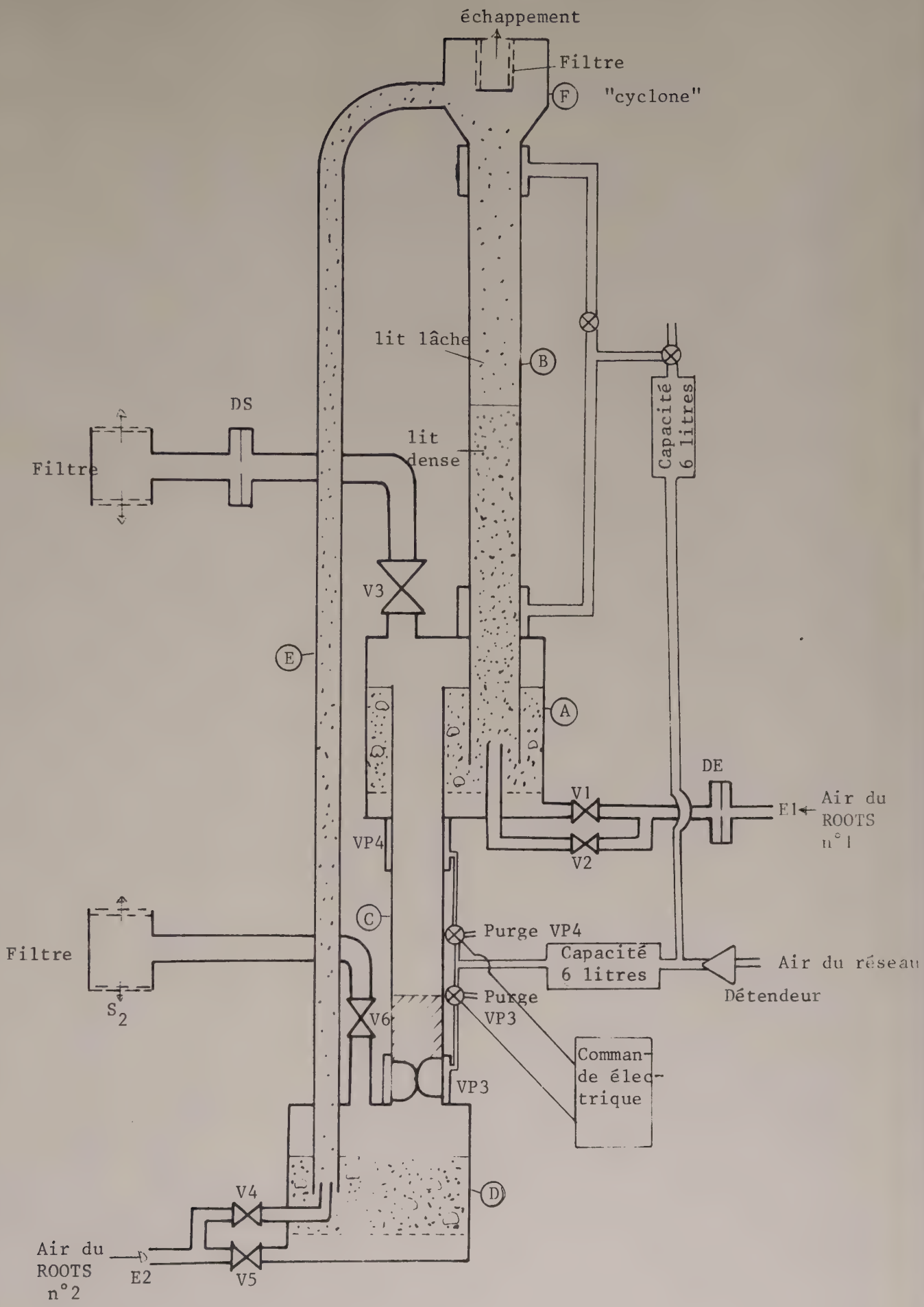


Fig. 3.2 - Appareil n° 2

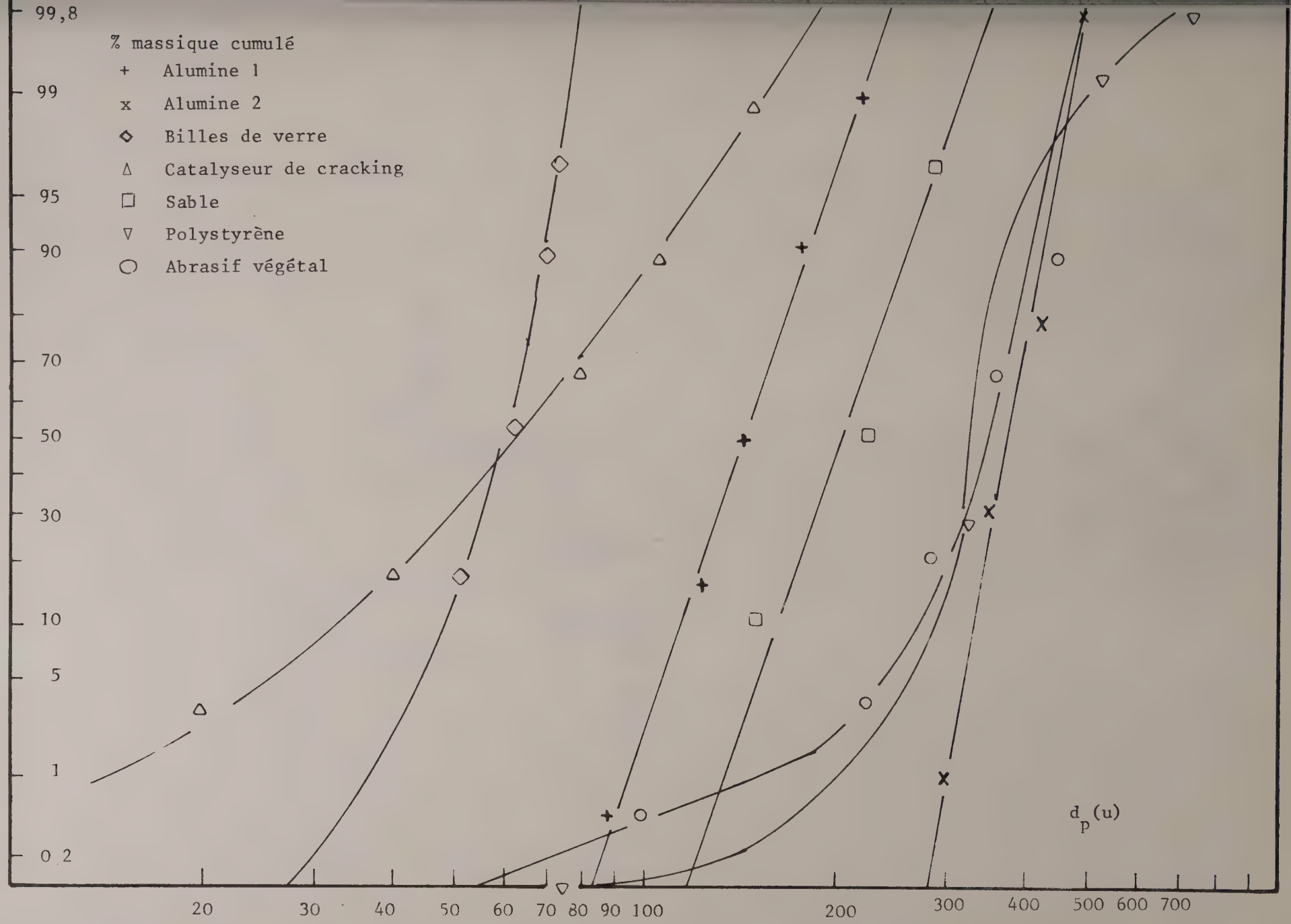


Fig. 3.3 - Courbes granulométriques

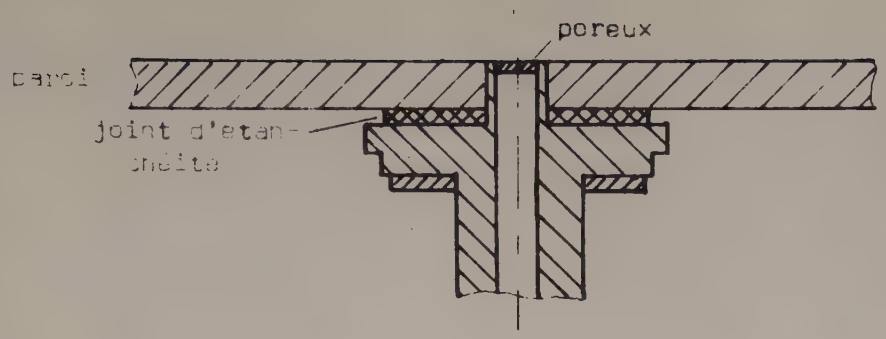


Fig. 3.4 -

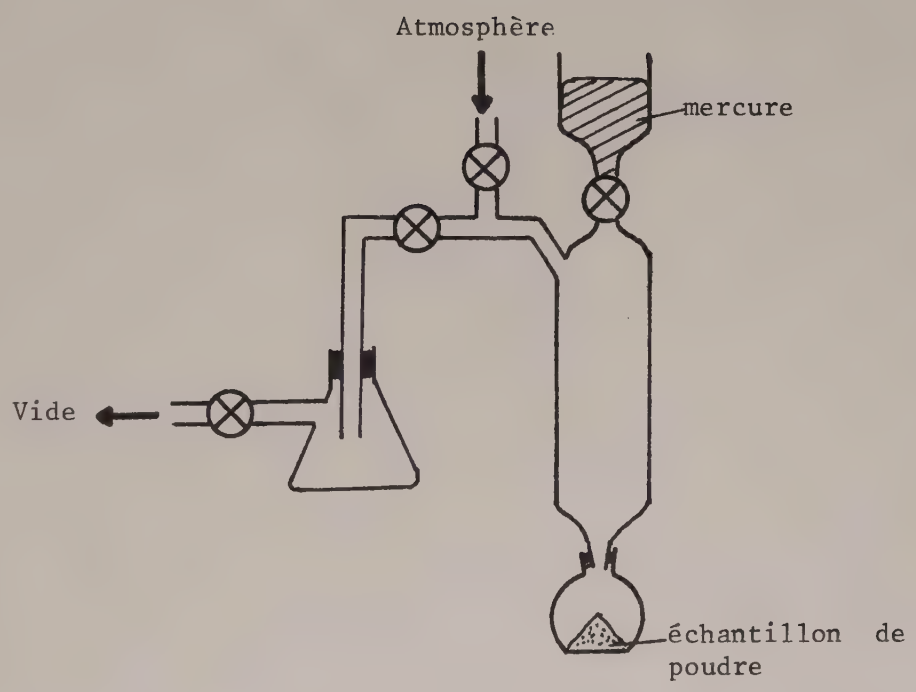


Fig. 3.5 - Picnomètre à mercure

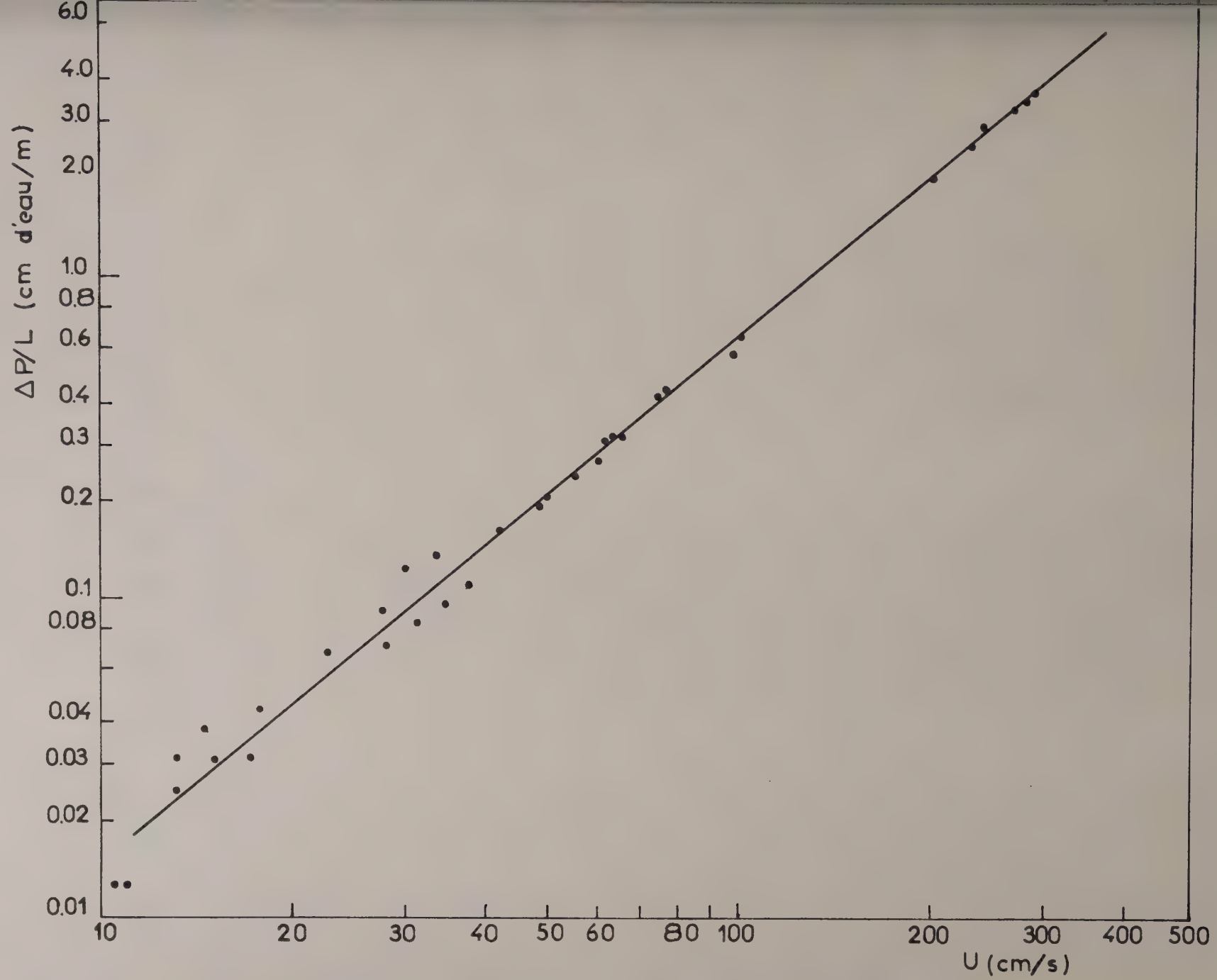


Fig. 4.1-CHUTE DE PRESSION DANS LE GARNISSAGE SEUL

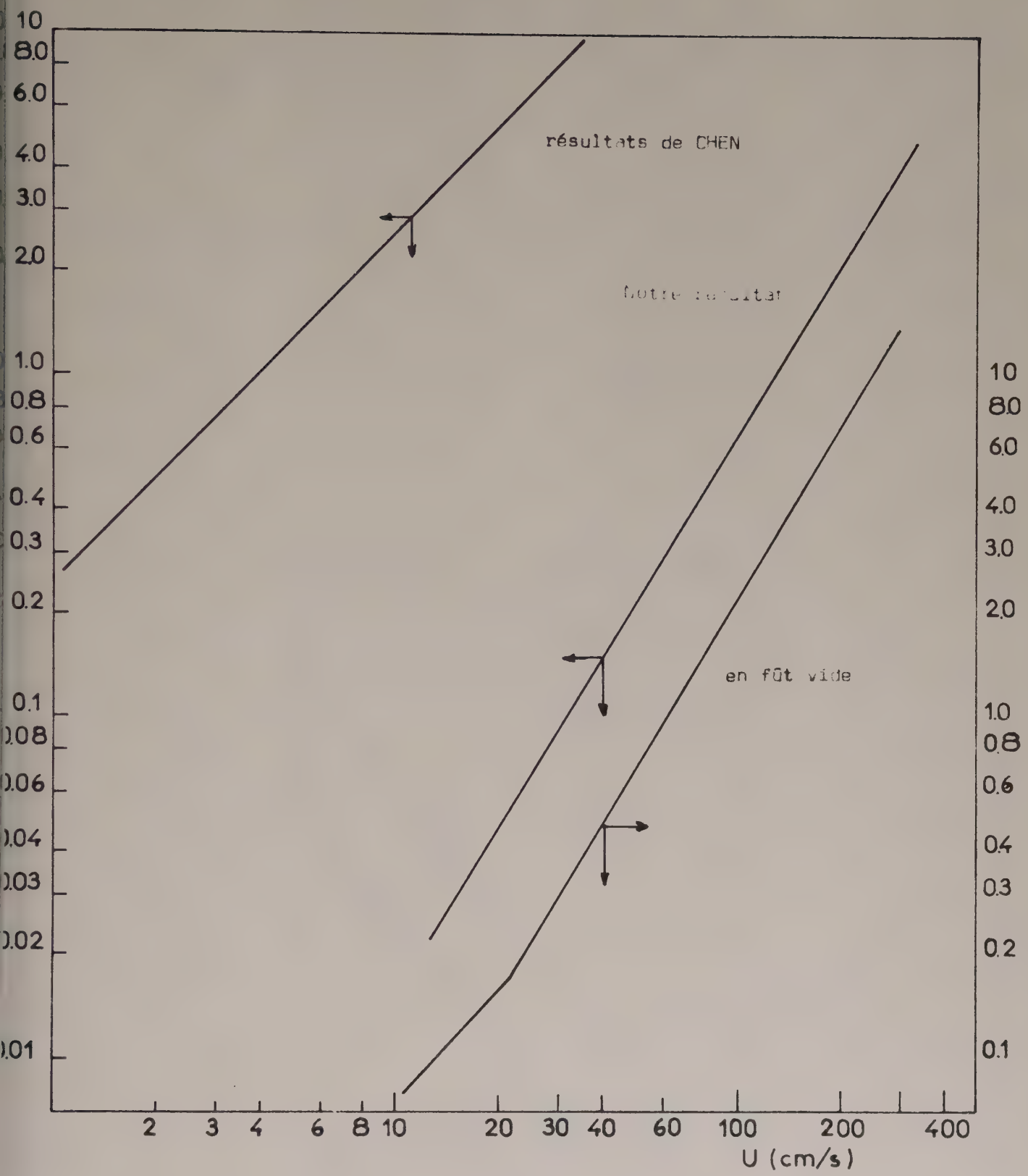


Fig. 4.2 – COMPARAISON DES RESULTATS SUR LES CHUTES DE PRESSION DANS LE GARNISSAGE SEUL

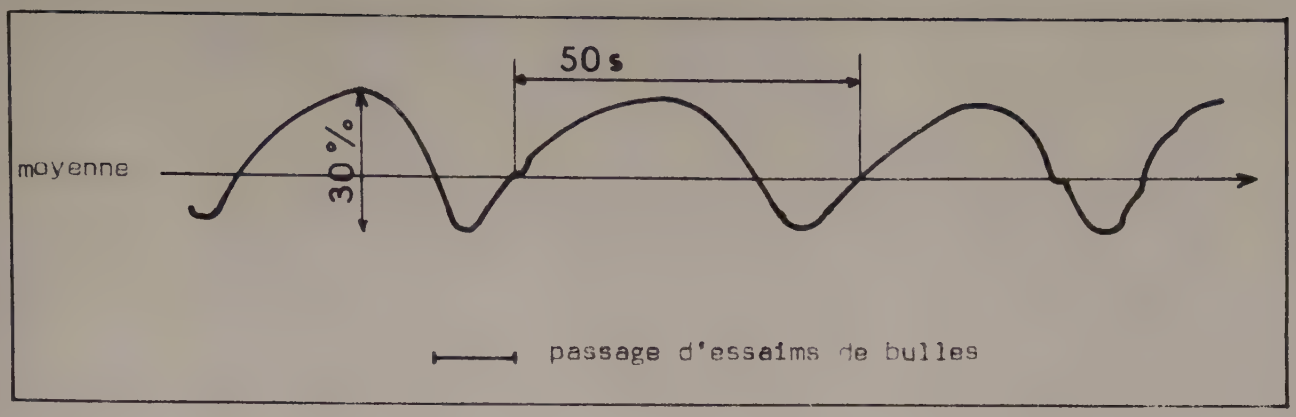


Fig. 4-3 -FLUCTUATIONS DE PRESSION DANS LE LIT D'ALUMINE 107 μ

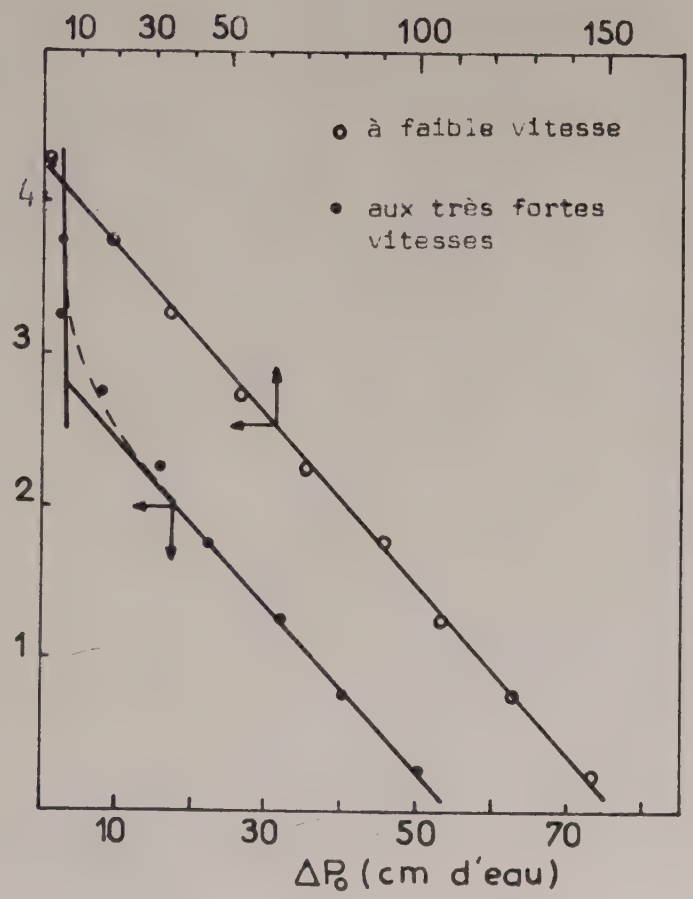


Fig. 4.4-EXEMPLES DE PROFILS DE PRESSION OBTENUS SUR DES LITS D'ALUMINE 350 μ

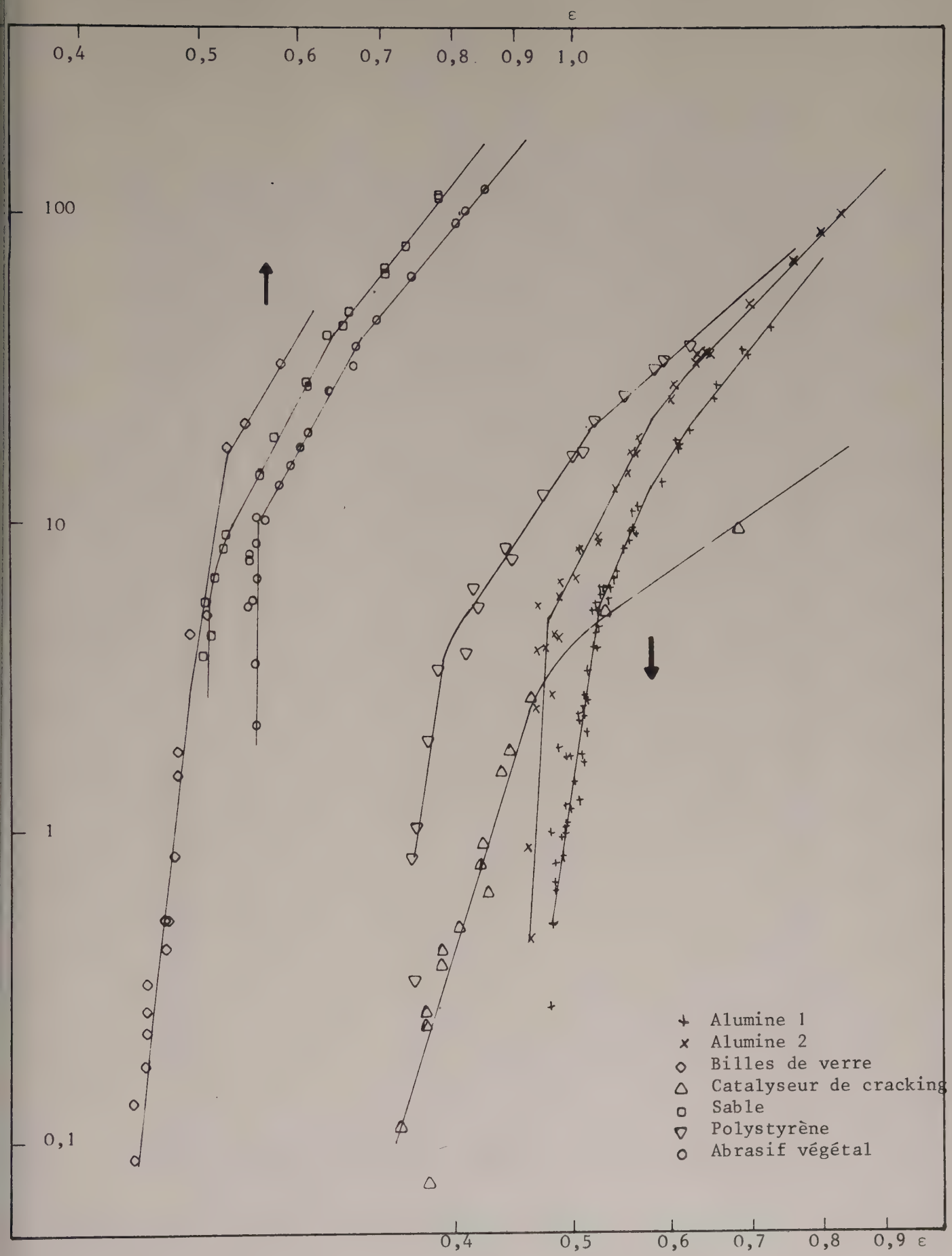


Fig. 4.5 - Expansion des lits fluidisés stagnants

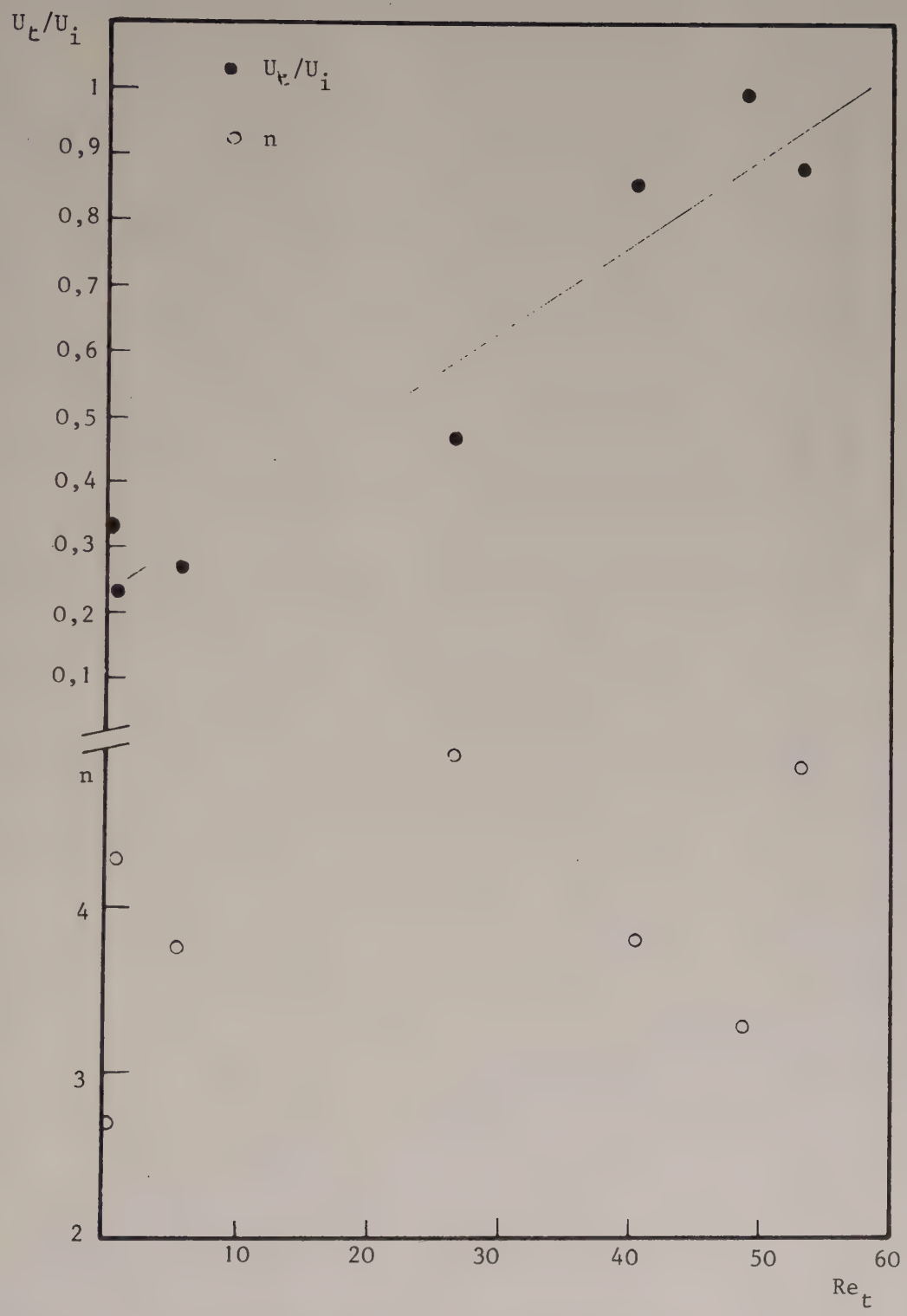


Fig. 4.6 - Correlation U_t/U_i et n en fonction de Re_t pour nos résultats

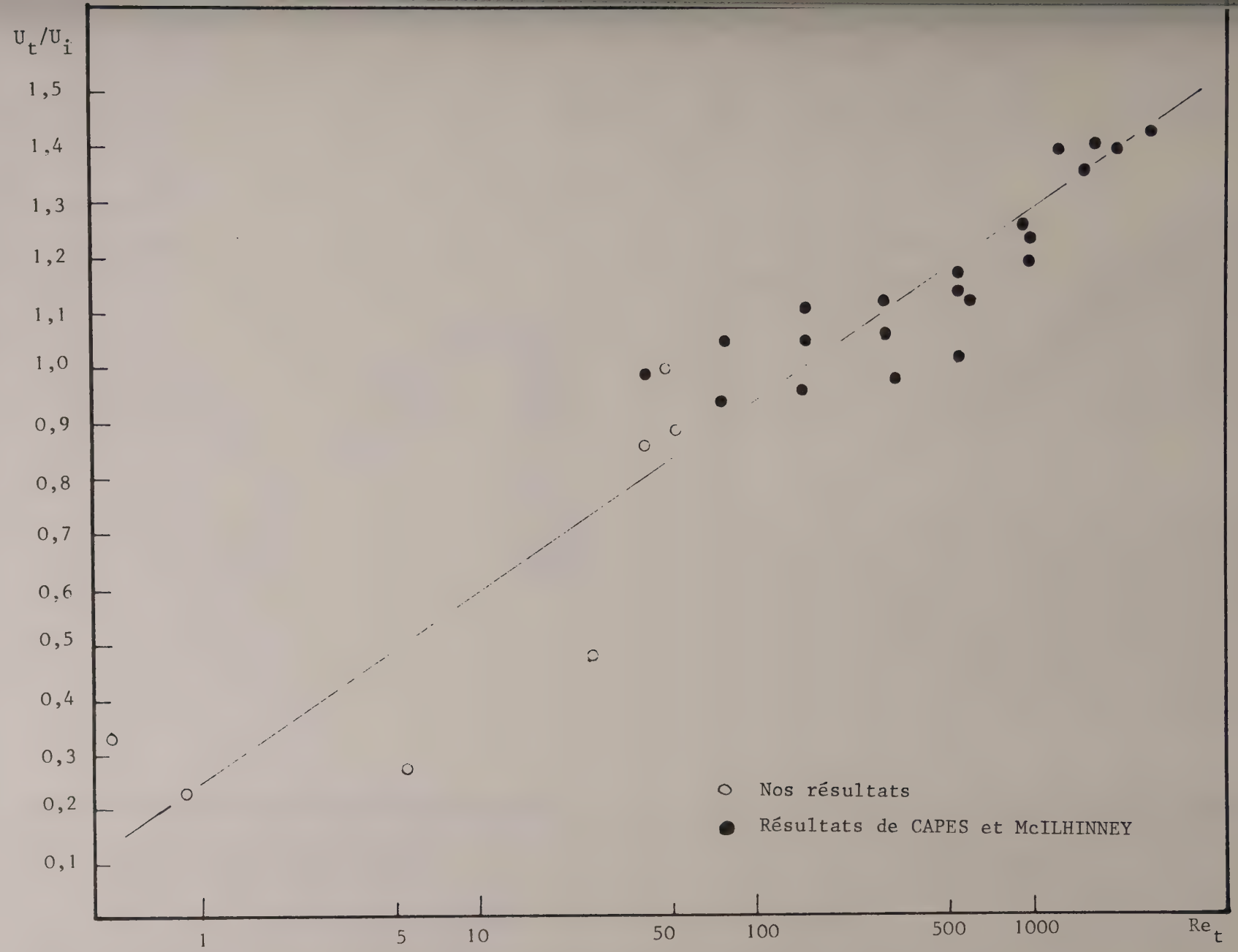
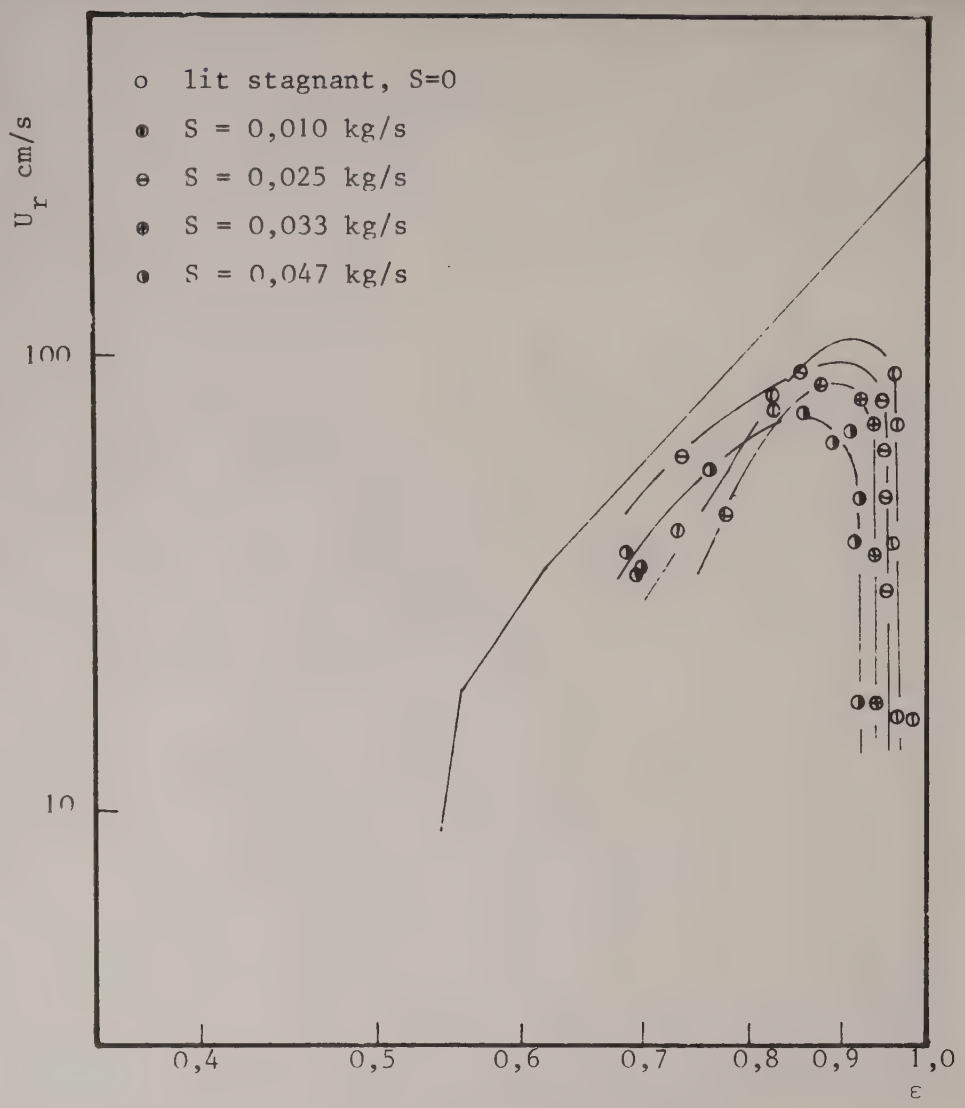
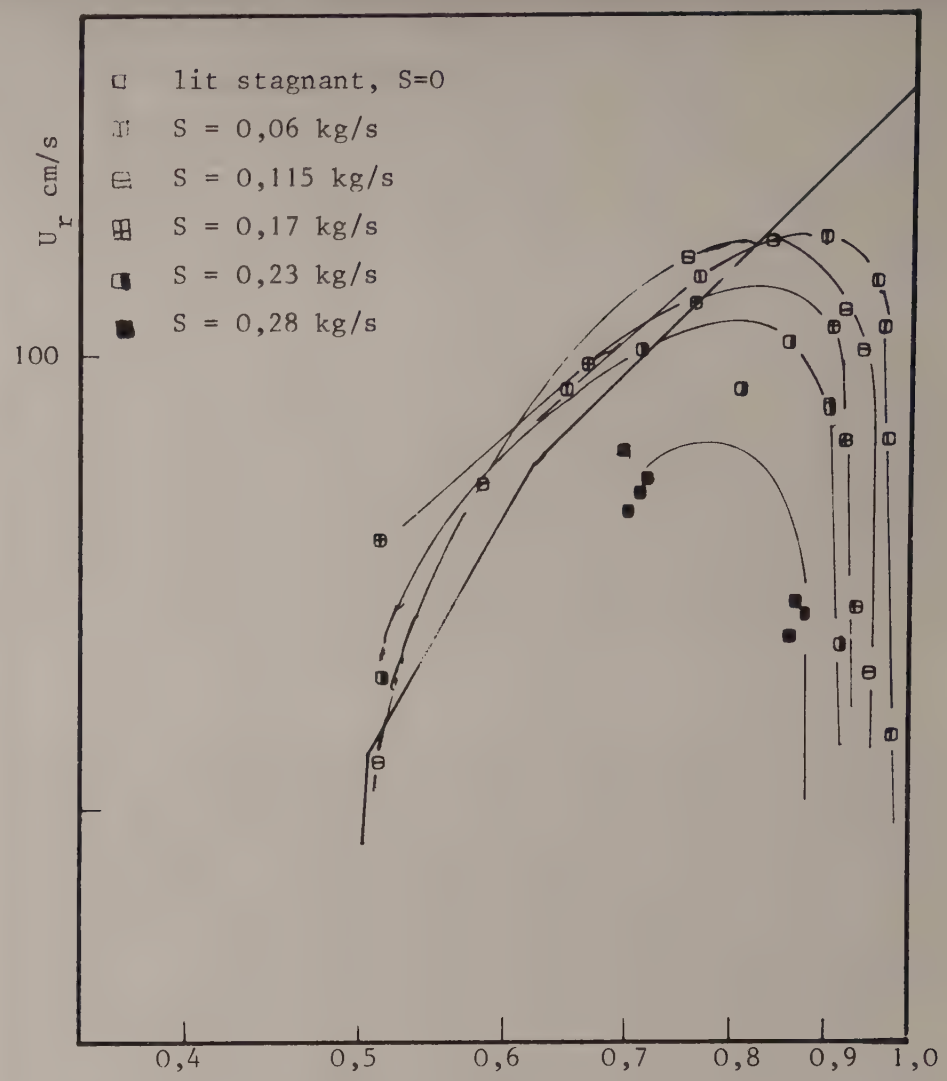


Fig. 4.7 - Correlation semi-logarithmique entre U_t/U_i et Re_t

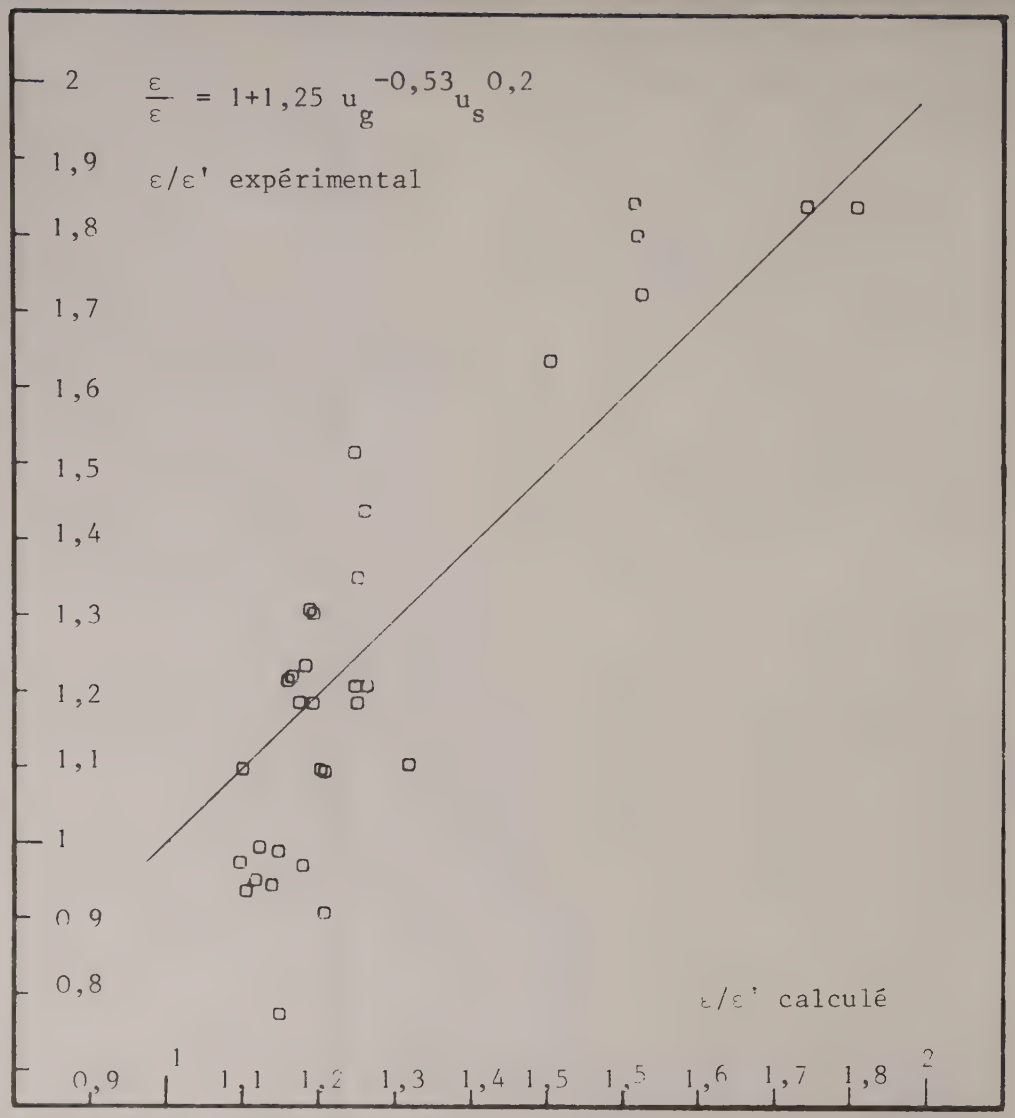


b) Cas de l'abrasif végétal

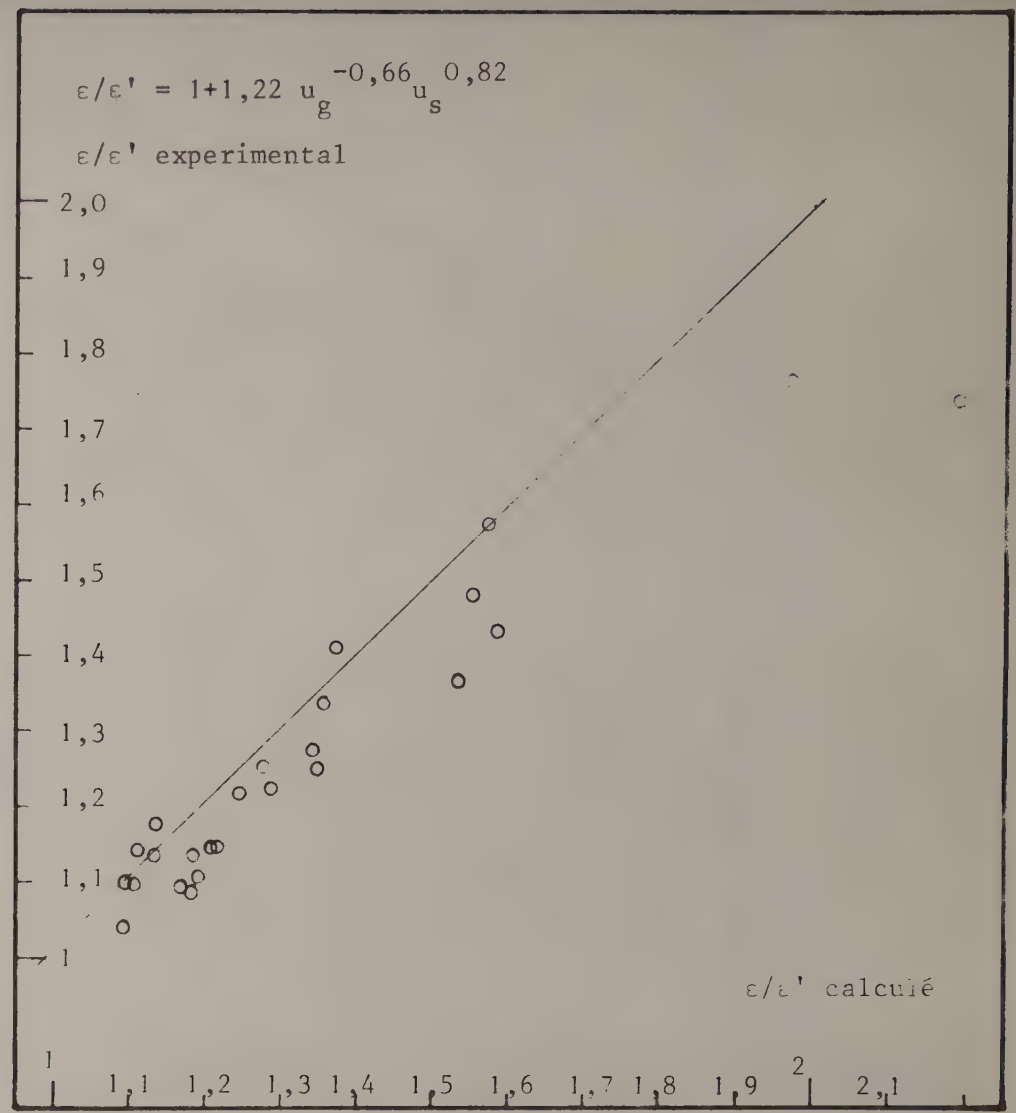


a) Cas du sable

Fig. 4.8 - Expansion des lits à contre-courant

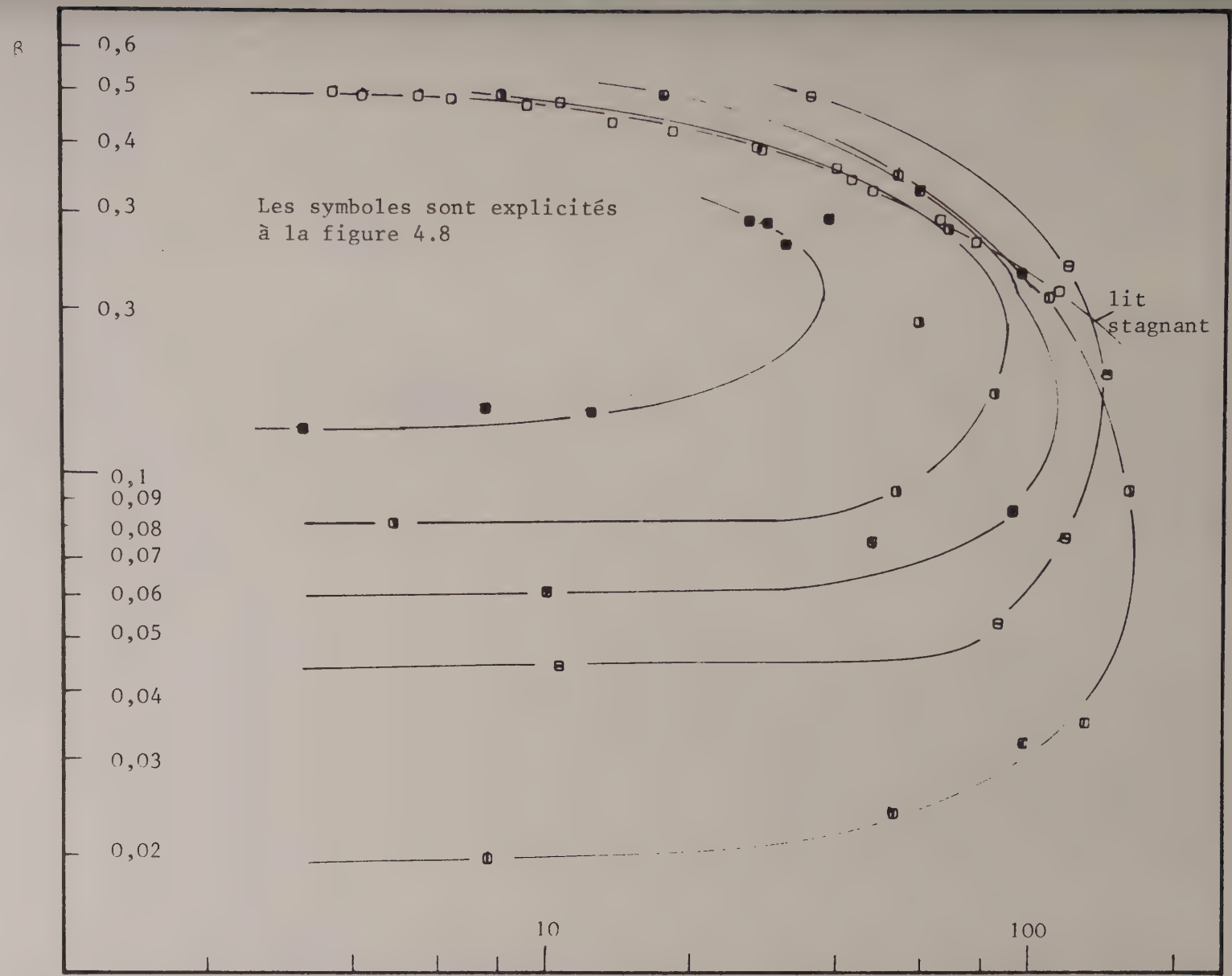


a) Sable



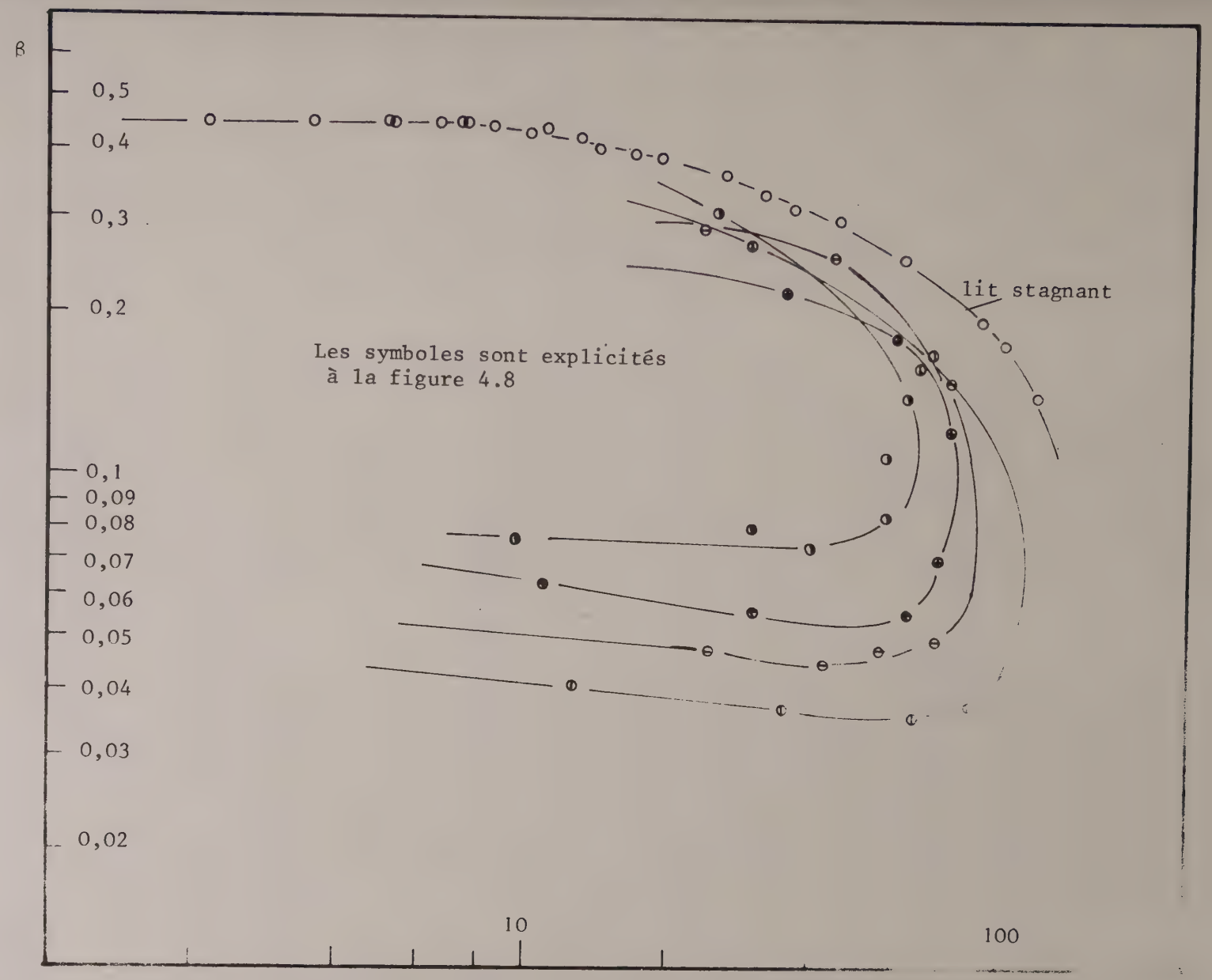
b) Abrasif végétal

Fig. 4.9 - Correlation ε/ε' en fonction de u_g et u_s



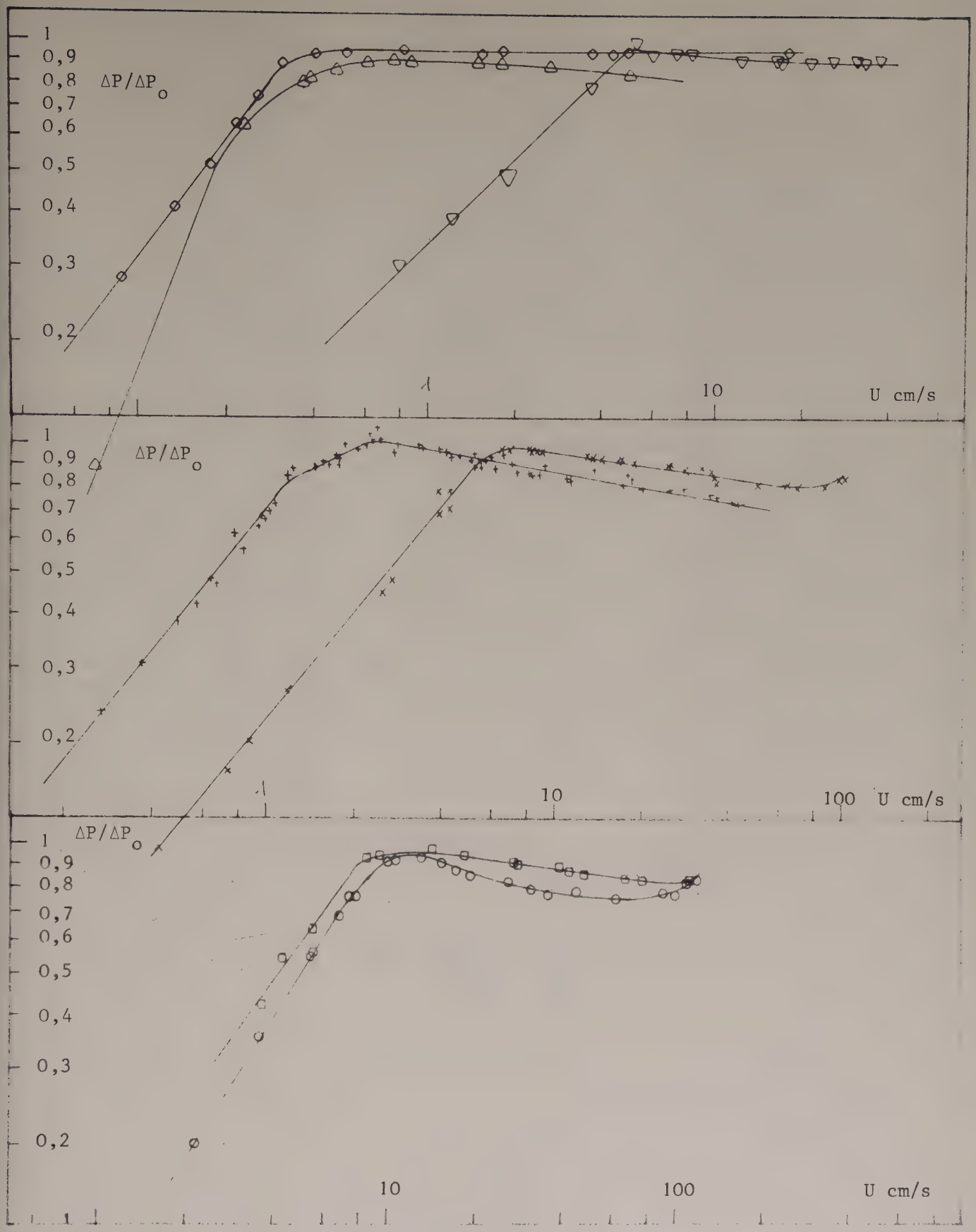
a) Cas du sable

Fig. 4.10 - Rétention à contre-courant



b) Cas de l'abrasif végétal

Fig. 4.10 - Rétention du lit à contre-courant



Symboles explicités figure 4.5

Fig. 4.11 - Perte de charge des lits fluidisés stagnants

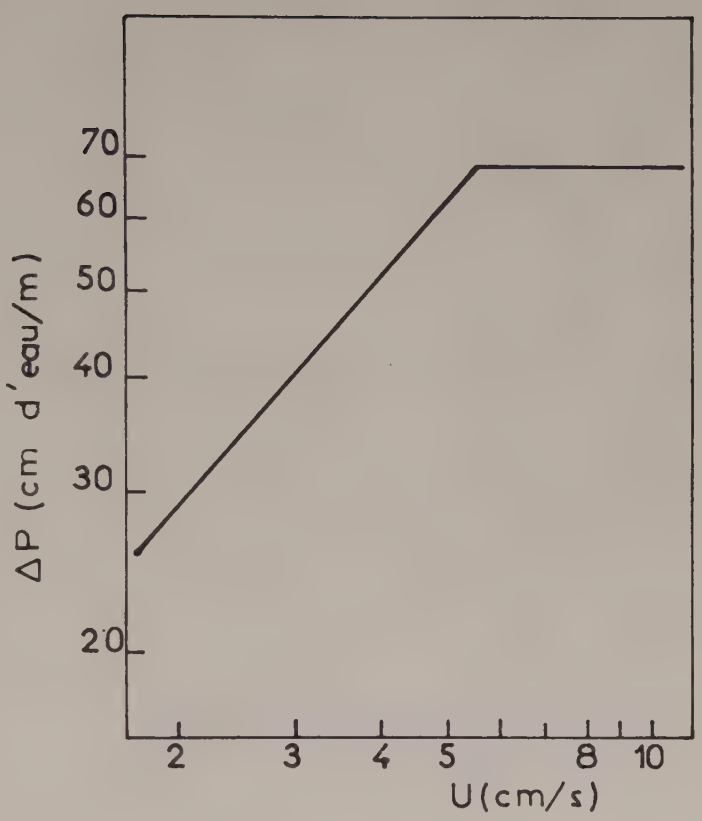


fig.4.12-CHUTE DE PRESSION EN LIT
FLUIDISÉ GARNI
d'apres JAIN et CHEN

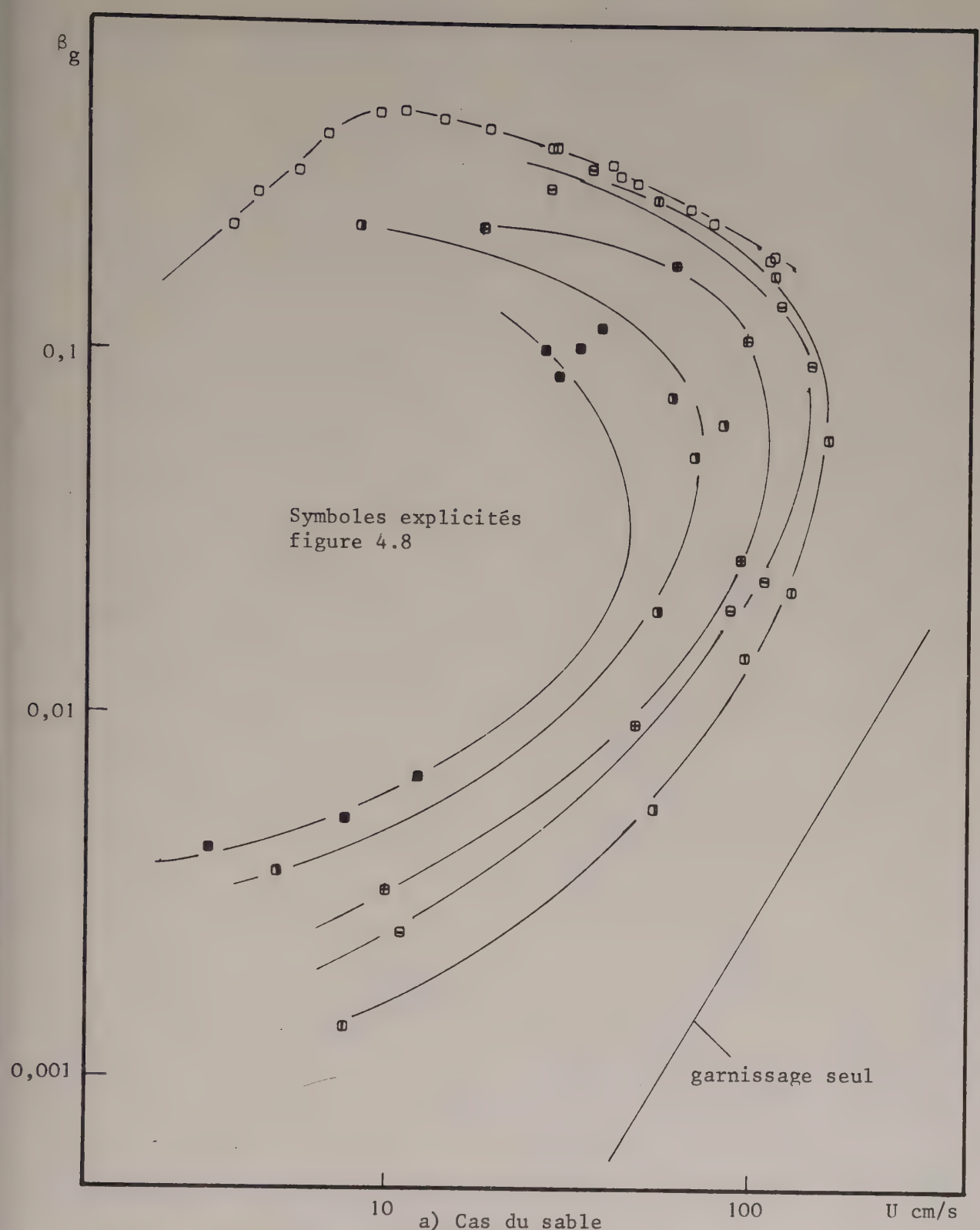


Fig. 4.13 - Perte de charge dans les lits fluidisés à contre-courant

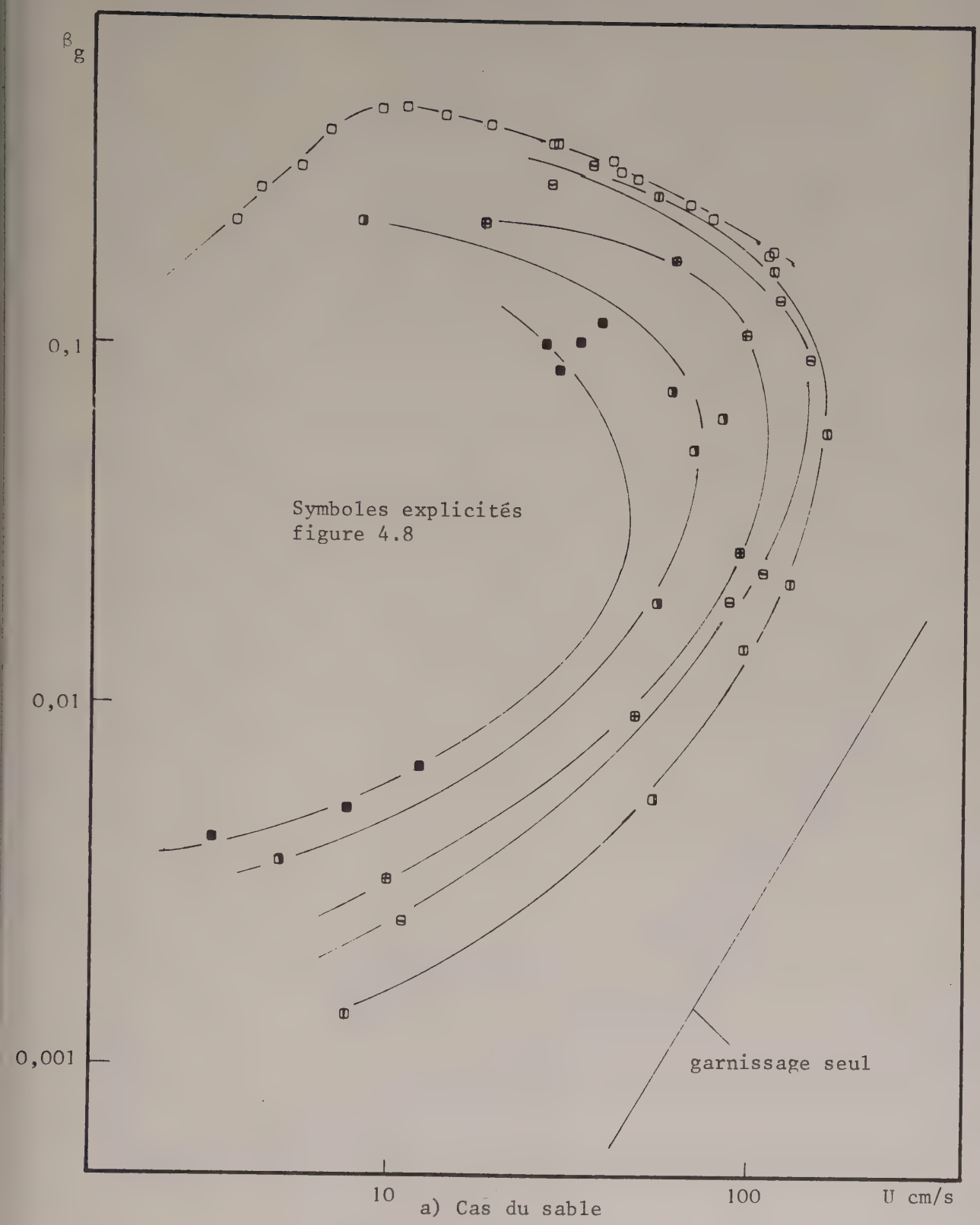
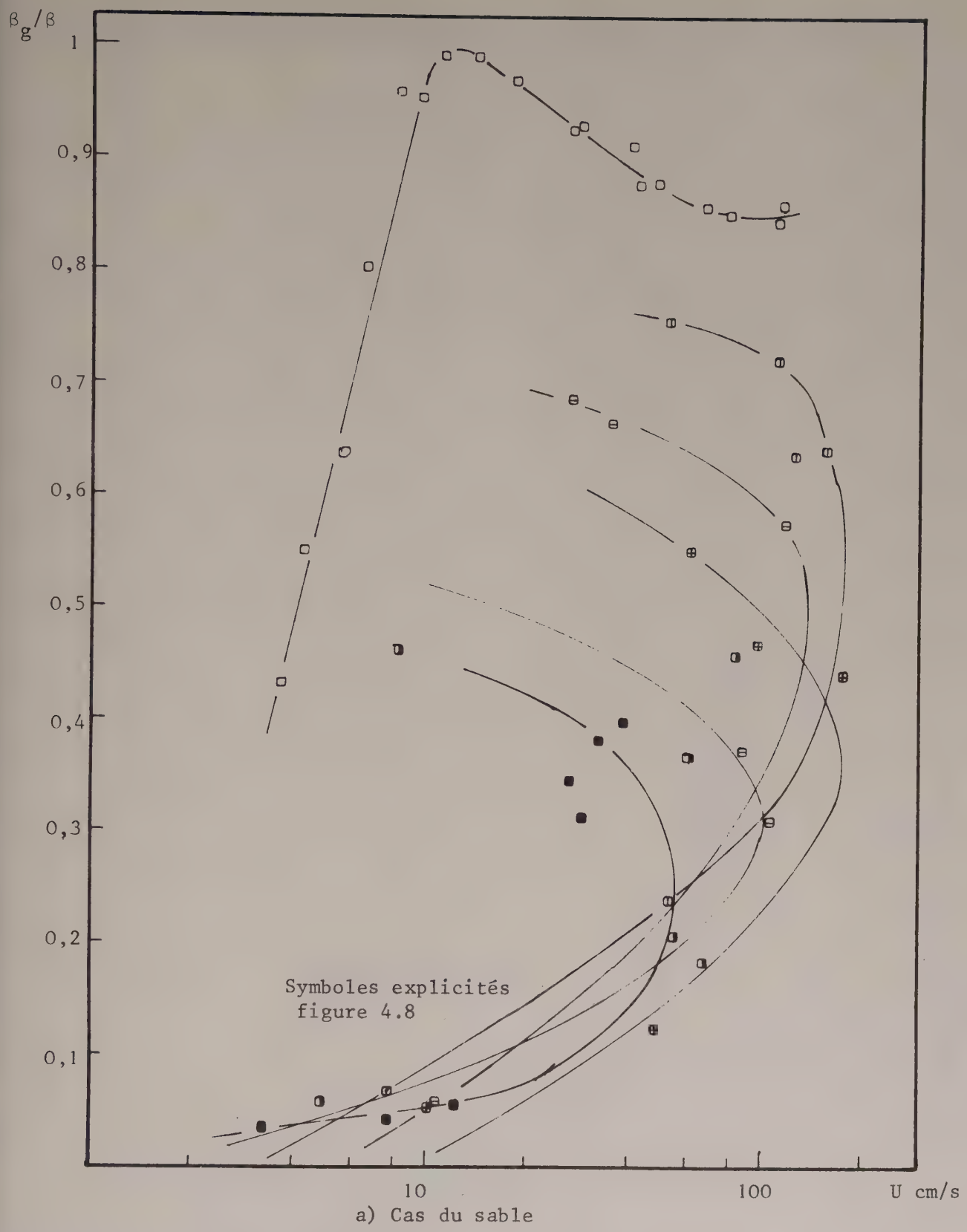
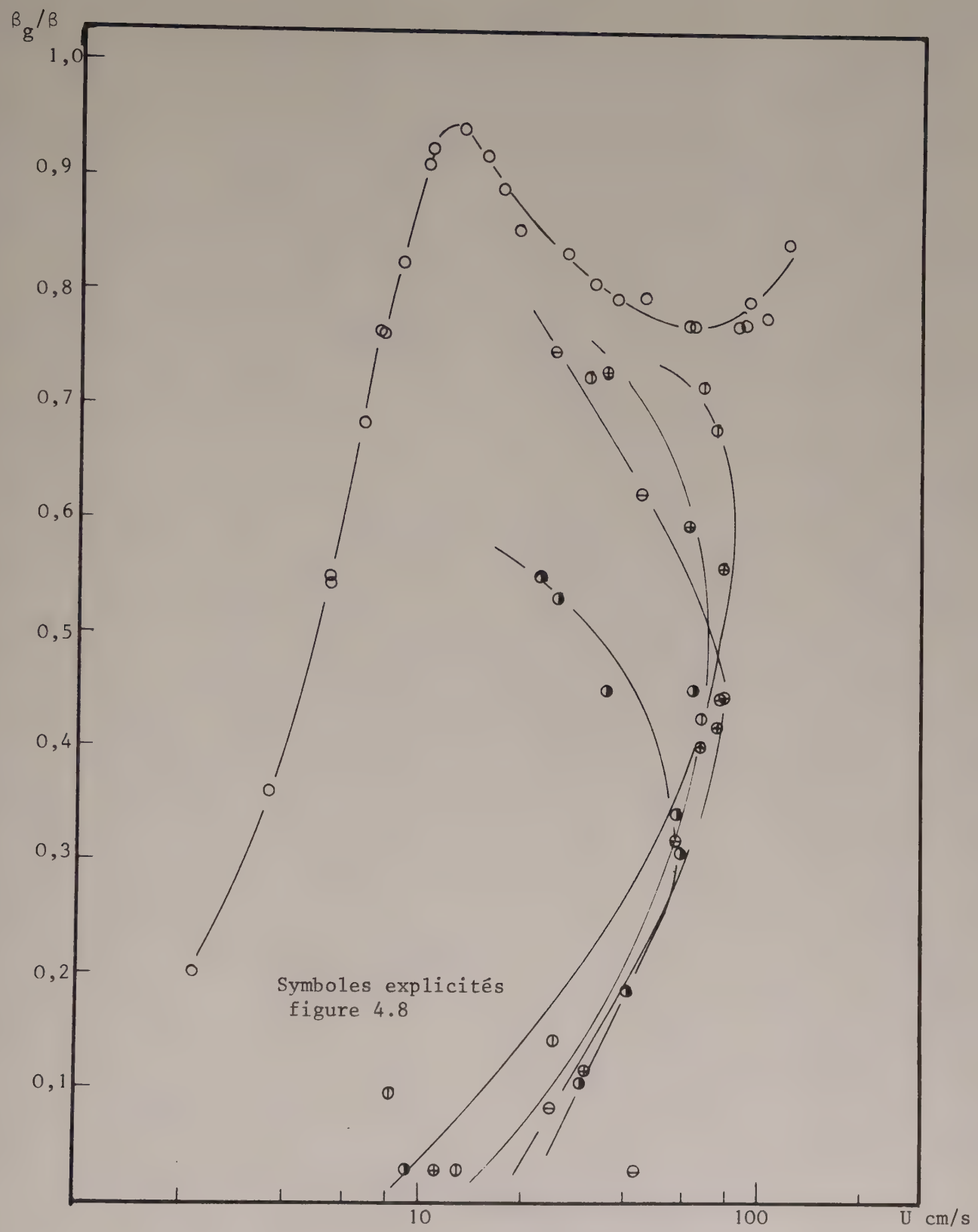


Fig. 4.13 - Perte de charge dans les lits fluidisés à contre-courant



a) Cas du sable

Fig. 4.14 - Contribution du gaz au support du lit fluidisé



b) Cas de l'abrasif végétal

Fig. 4.14 - Contribution du gaz au support du lit fluidisé

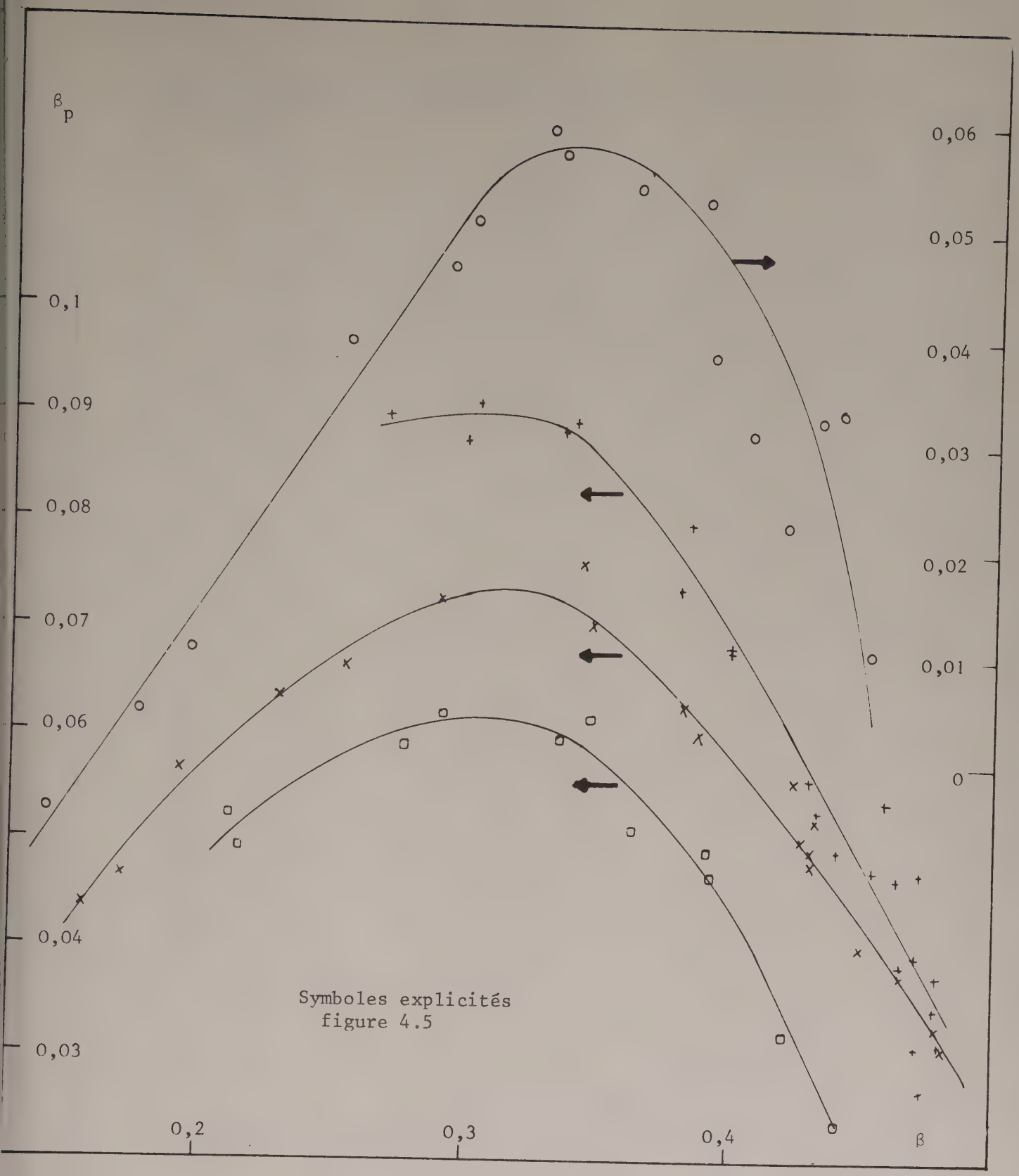
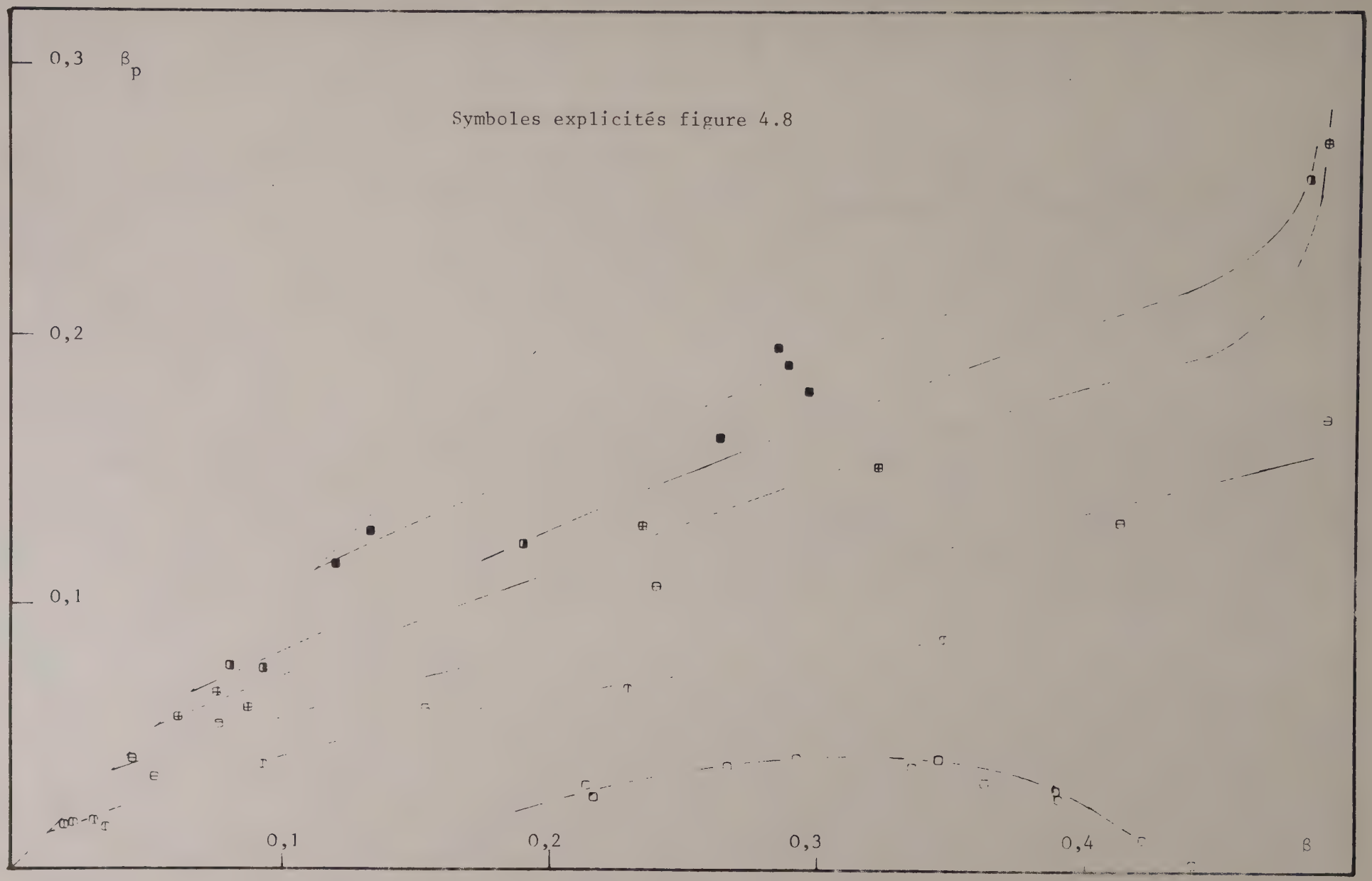
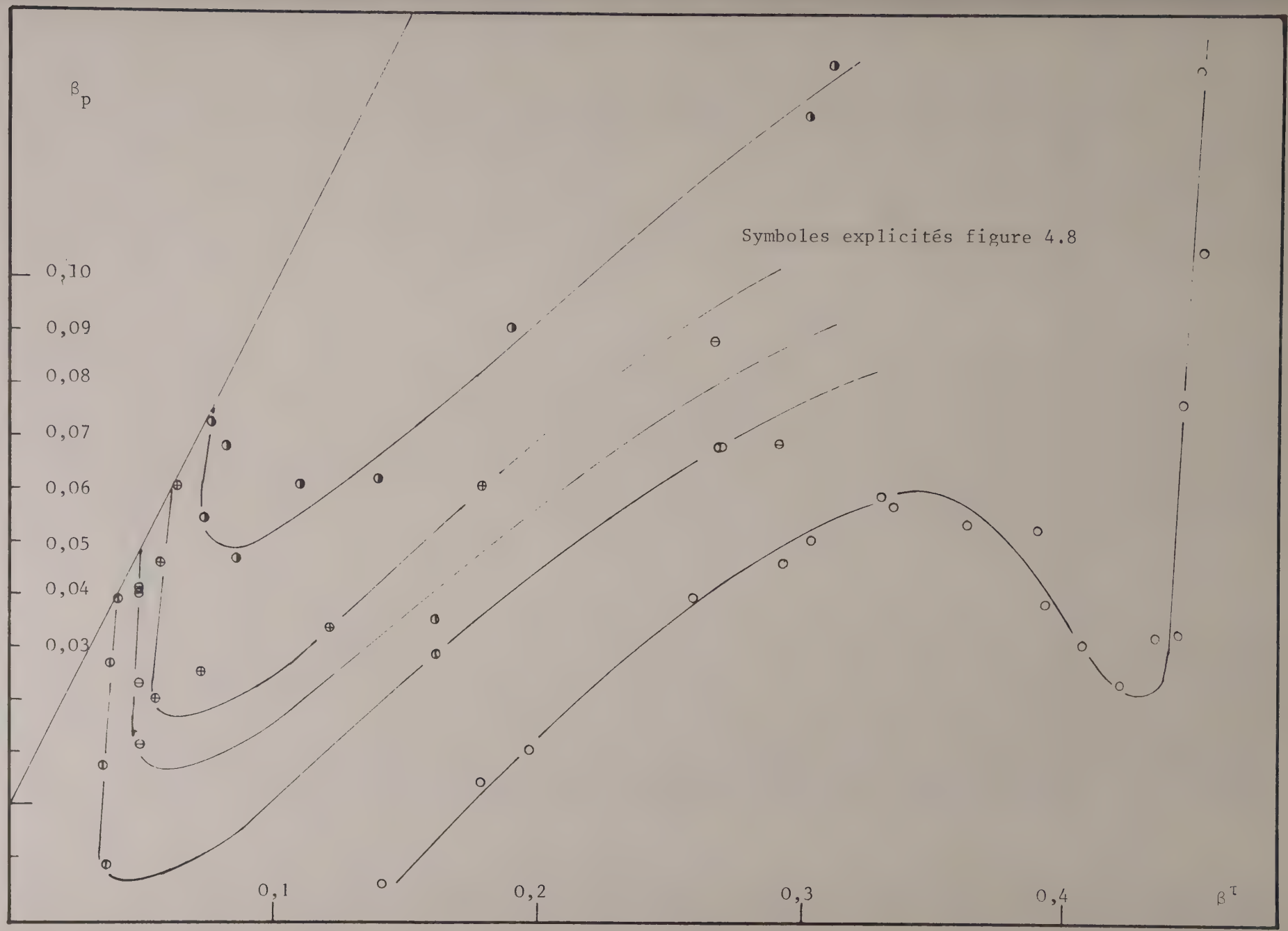


Fig. 4.15 - Friction solide-garnissage pour quelques lits fluidisés stagnants



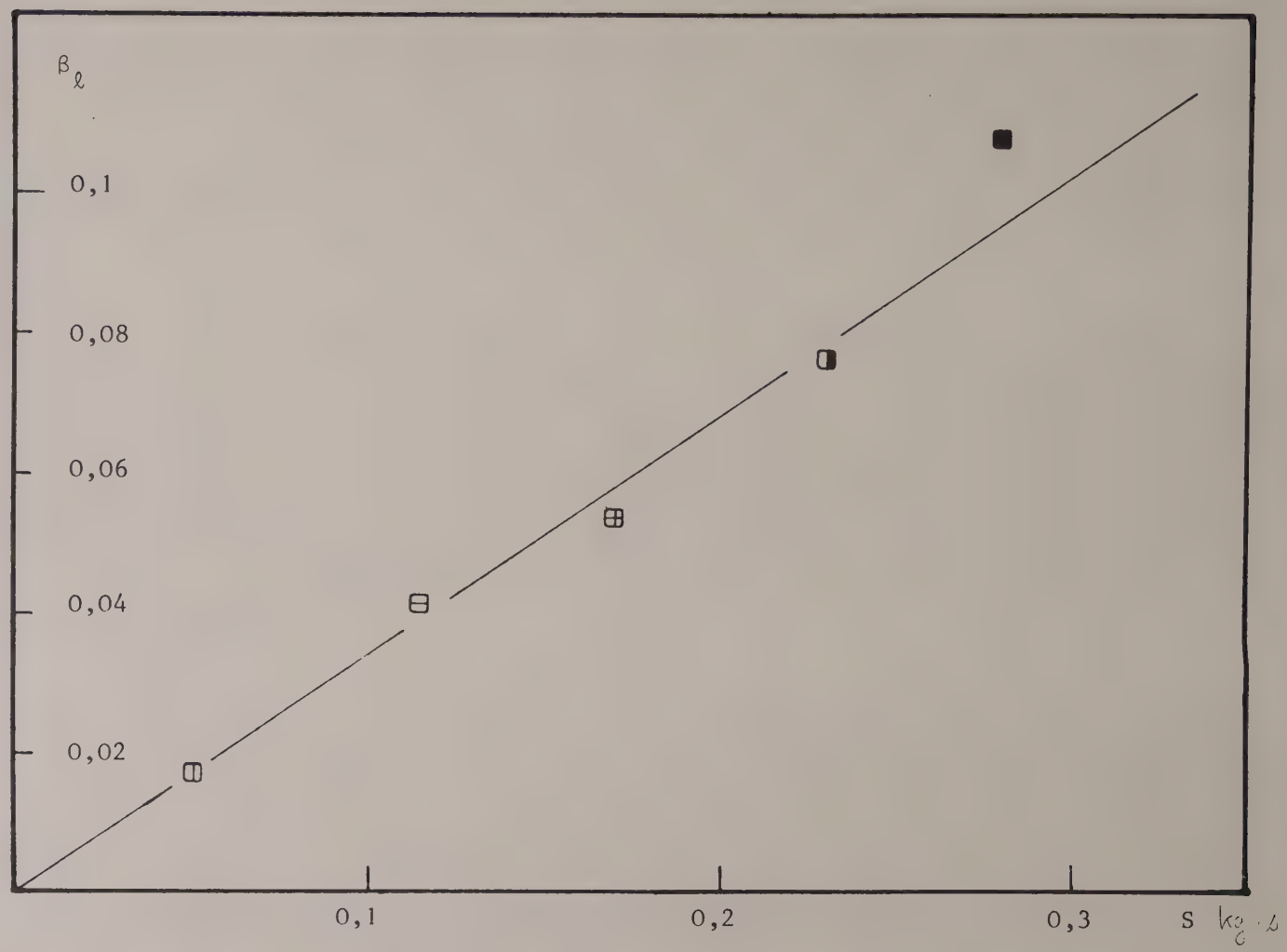
a) Cas du sable

Fig. 4.16 - Friction solide-garnissage à contre-courant



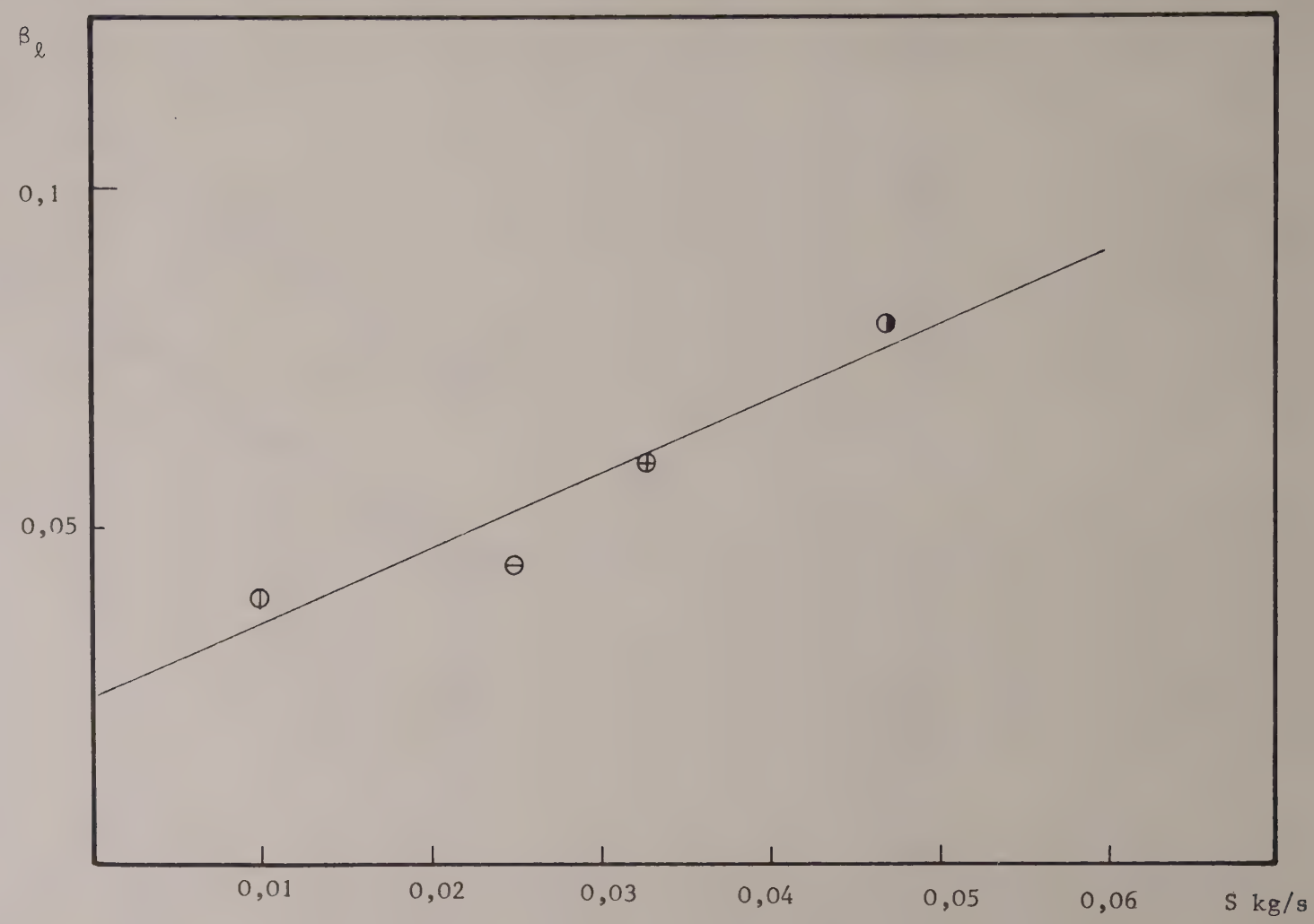
b) Cas de l'abrasif végétal

Fig. 4.16 - Friction solide-garnissage à contre-courant



a) Cas du sable

Fig. 4.17 - Rétention limite



b) Cas de l'abrasif végétal

Fig. 4.17 - Rétention limite

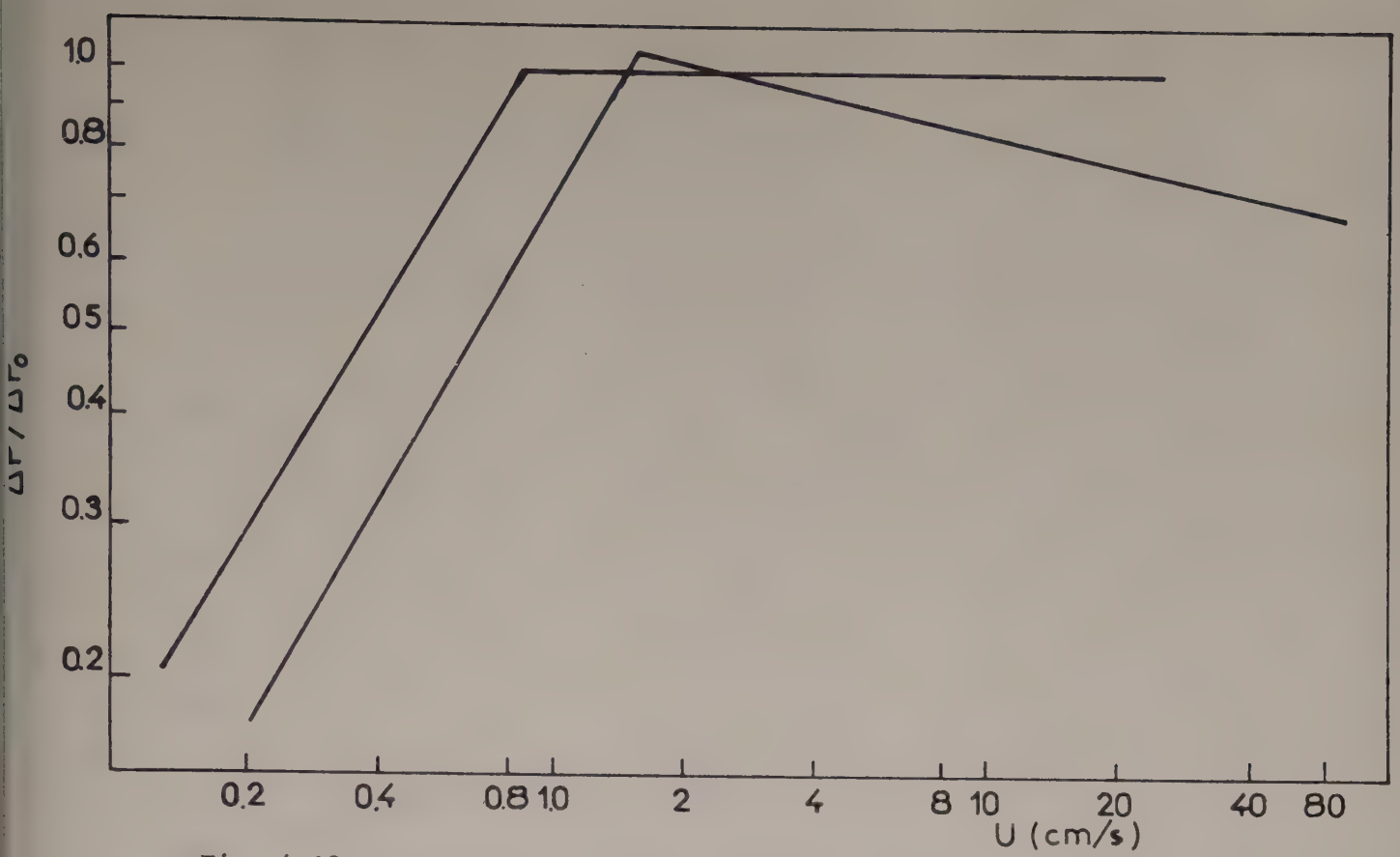


Fig. 4.18 COMPARAISON DE CHUTES DE PRESSION en LIT BOUCHONNANT et en LIT GARNI

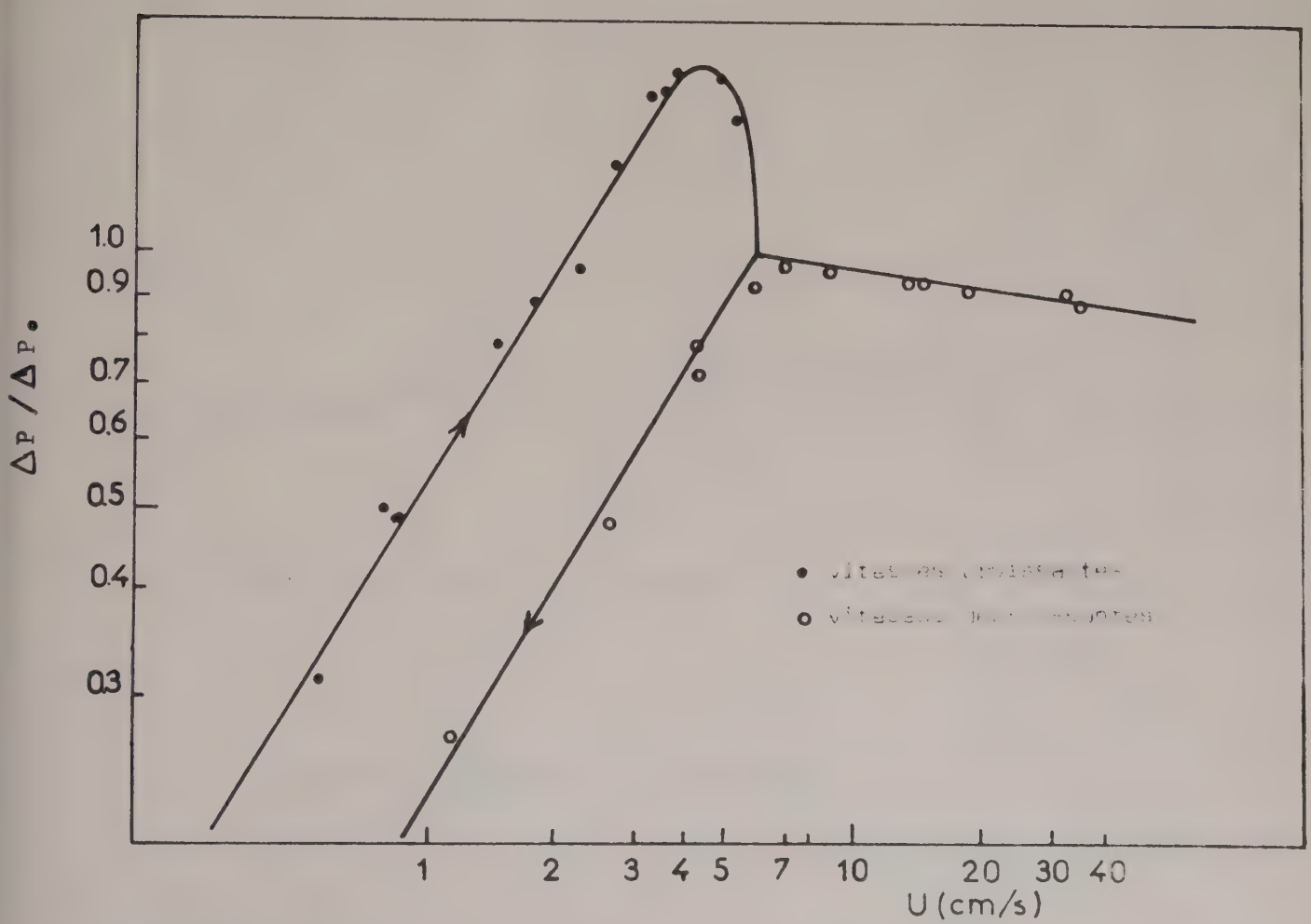


Fig. 4.19 – HYSTERESE DE CHUTE DE PRESSION

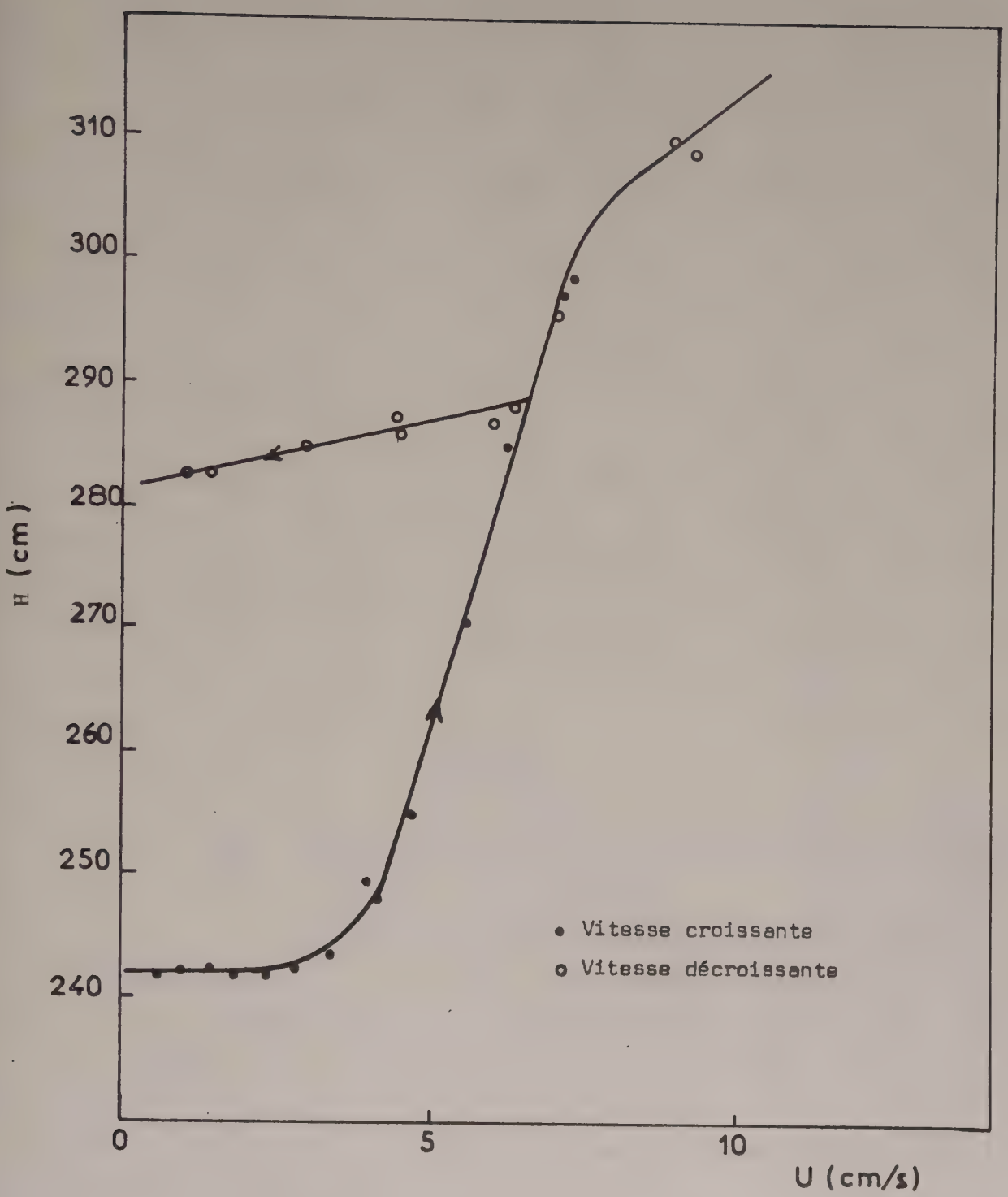


Fig. 4.20 - HYSTERESE SUR L'EXPANSION DU LIT

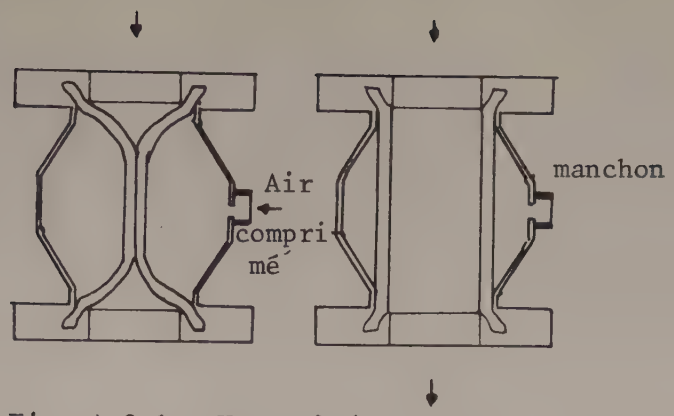


Fig. A.3.1 - Vanne à écrasement DOSAPRO

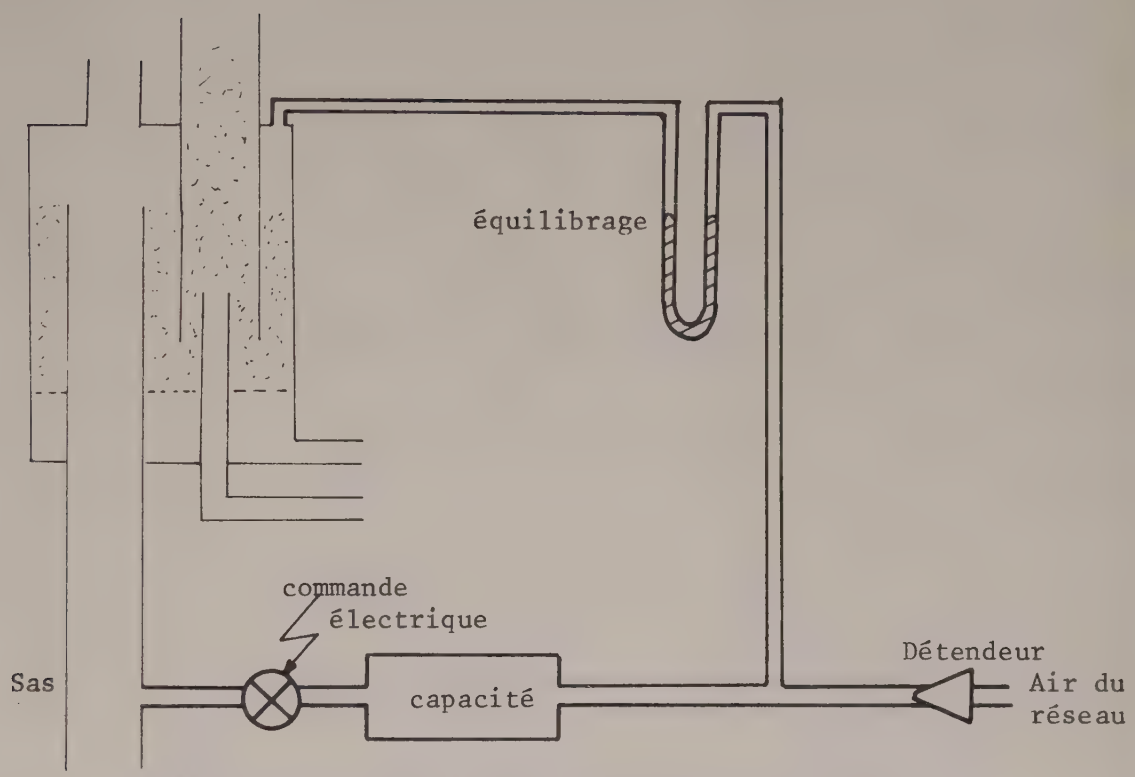


Fig. A.3.2 - Equilibrage des pressions du sas

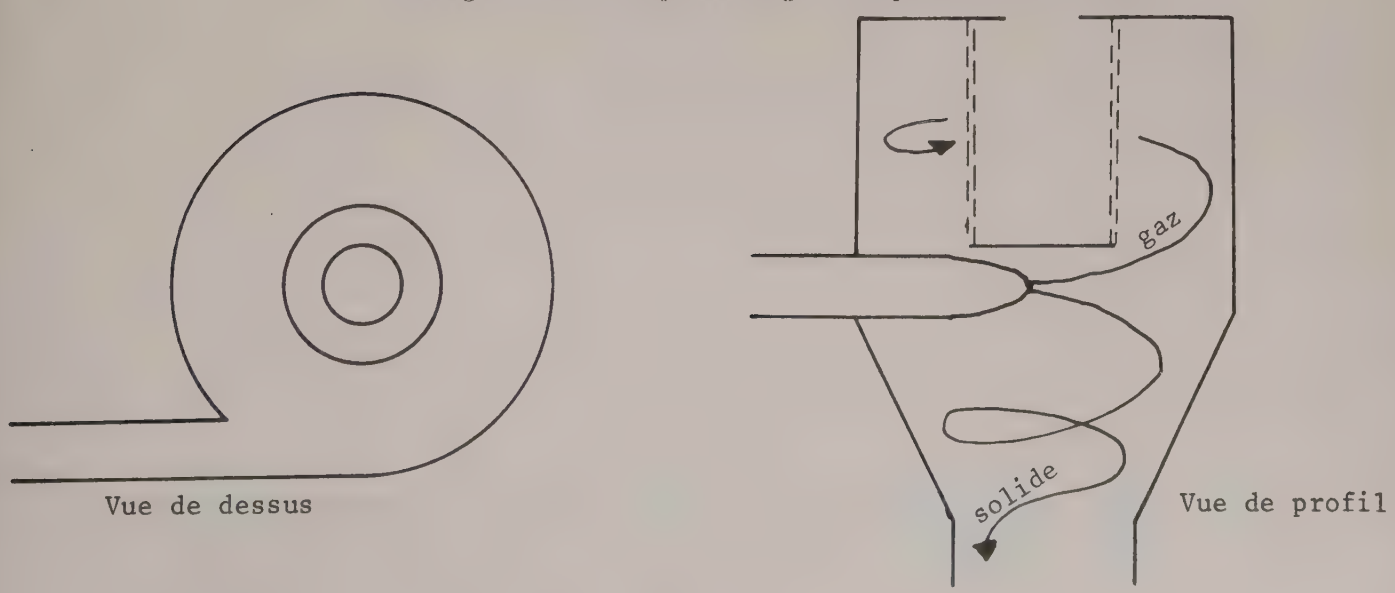


Fig. A.3.3 - Cyclone

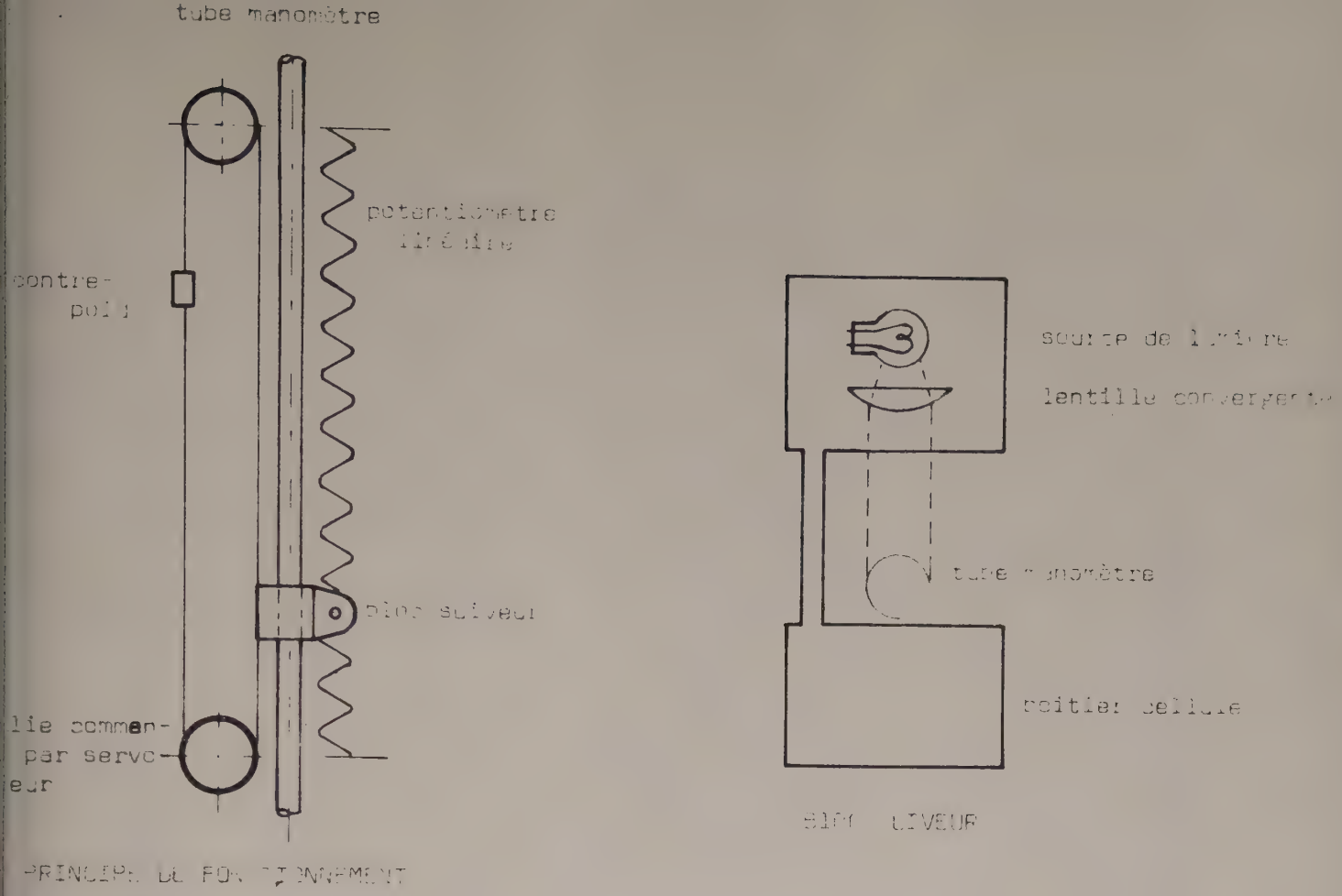


Fig A.3.4 - Suiveur de niveau

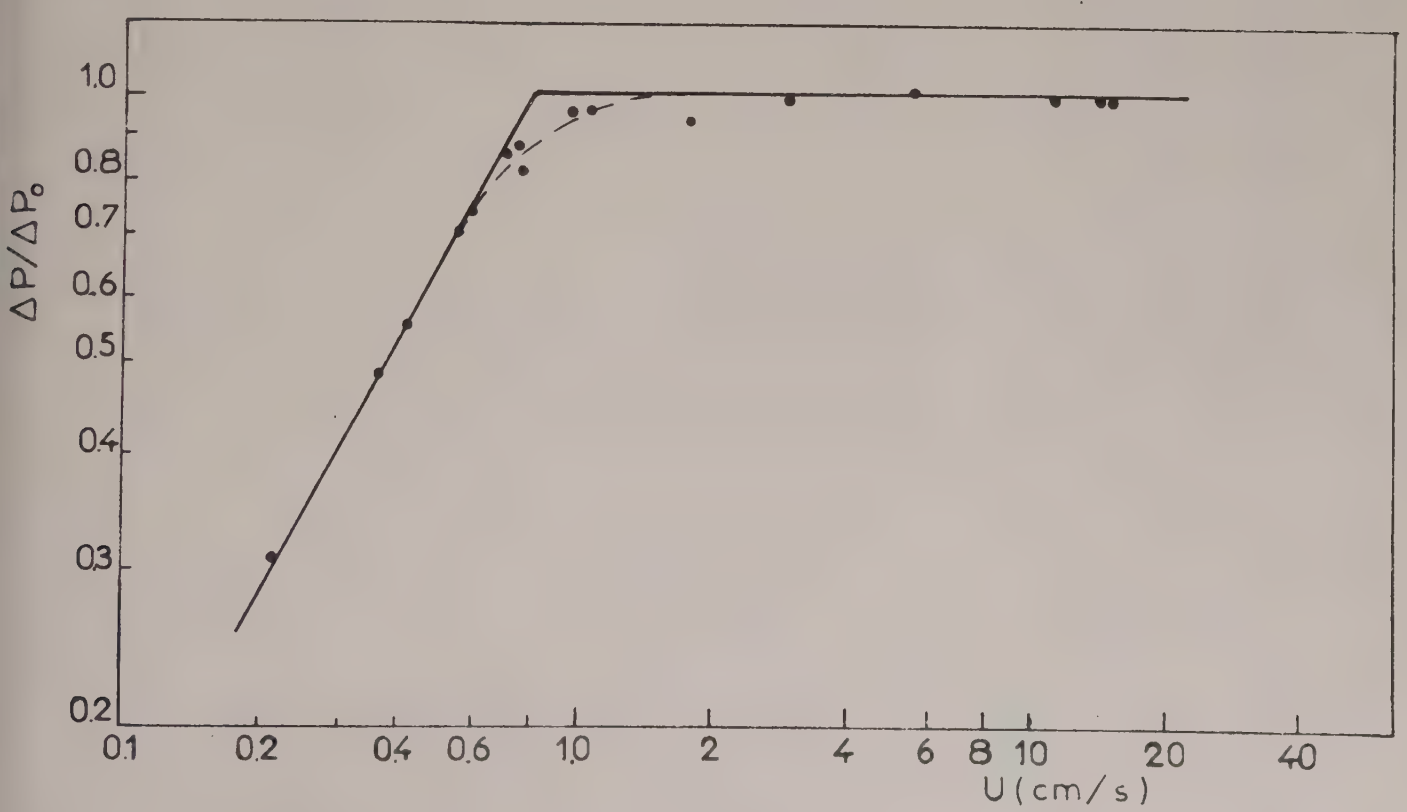


Fig. A.4.1 - CHUTE DE PRESSION EN LIT BOUCHONNANT

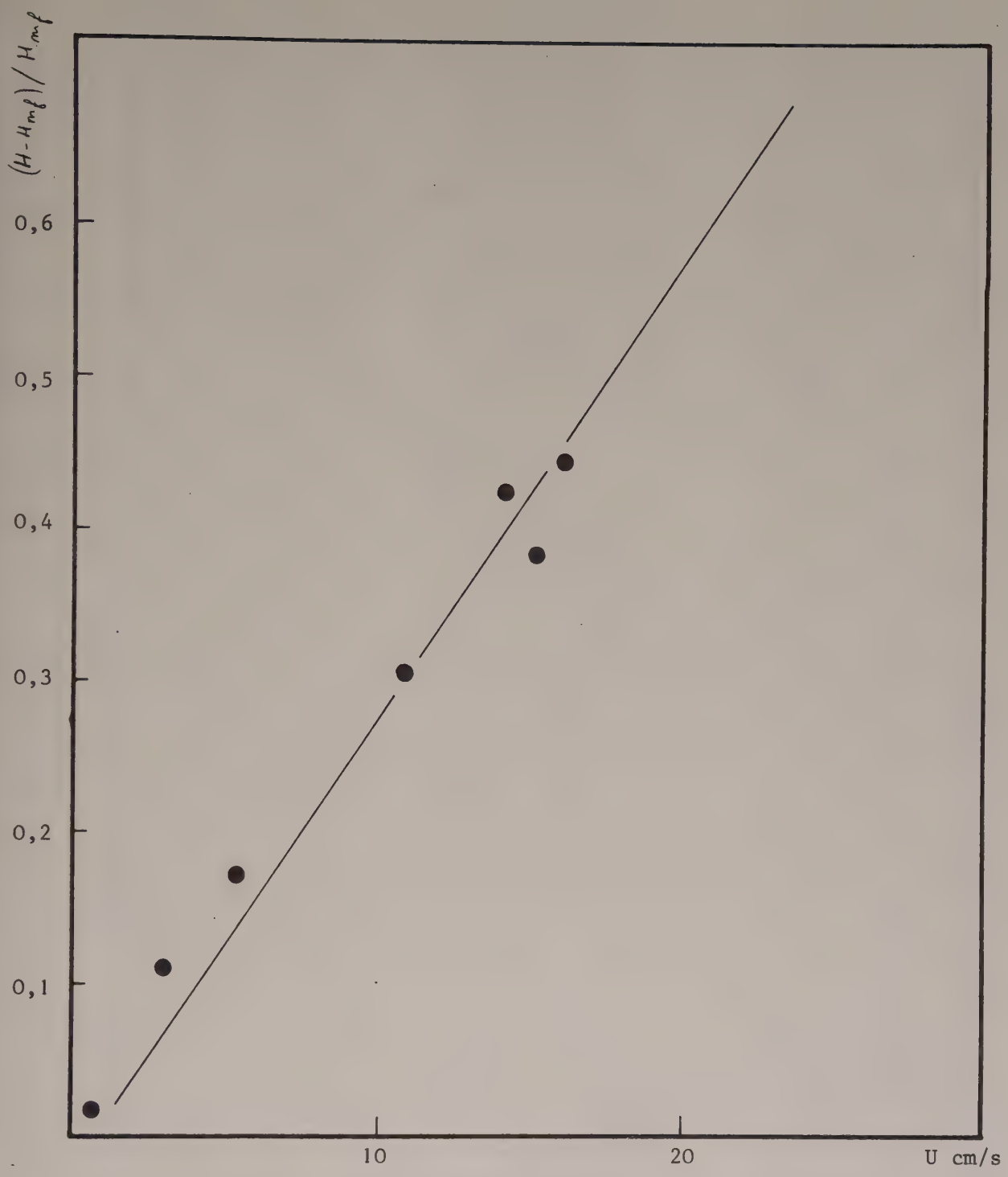


Fig. A.4.2 - Expansion d'un lit bouchonnant

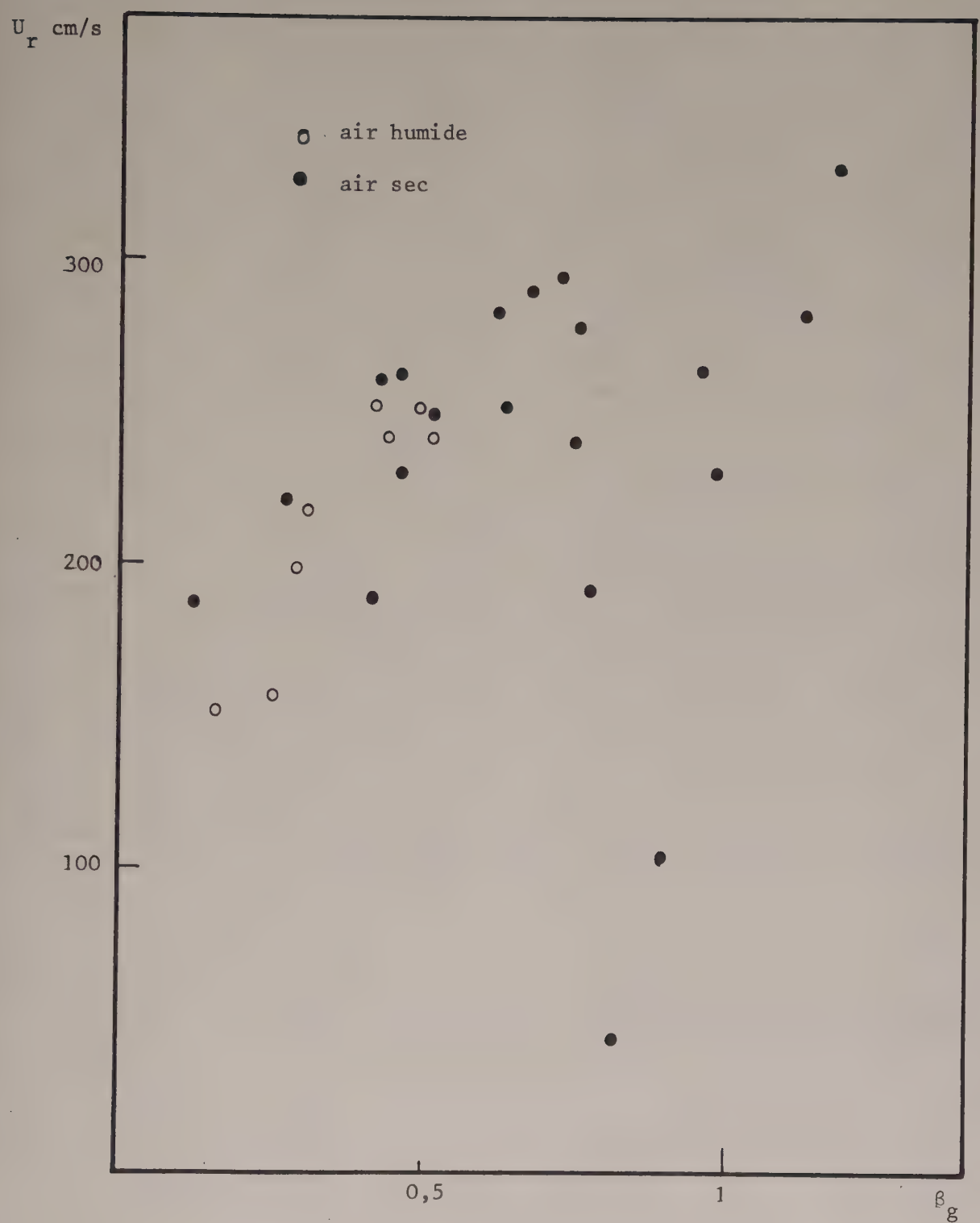


Fig. A.4.3 - Courbe U_r en fonction de β,
Cas du sable à contre-courant sans anneaux.

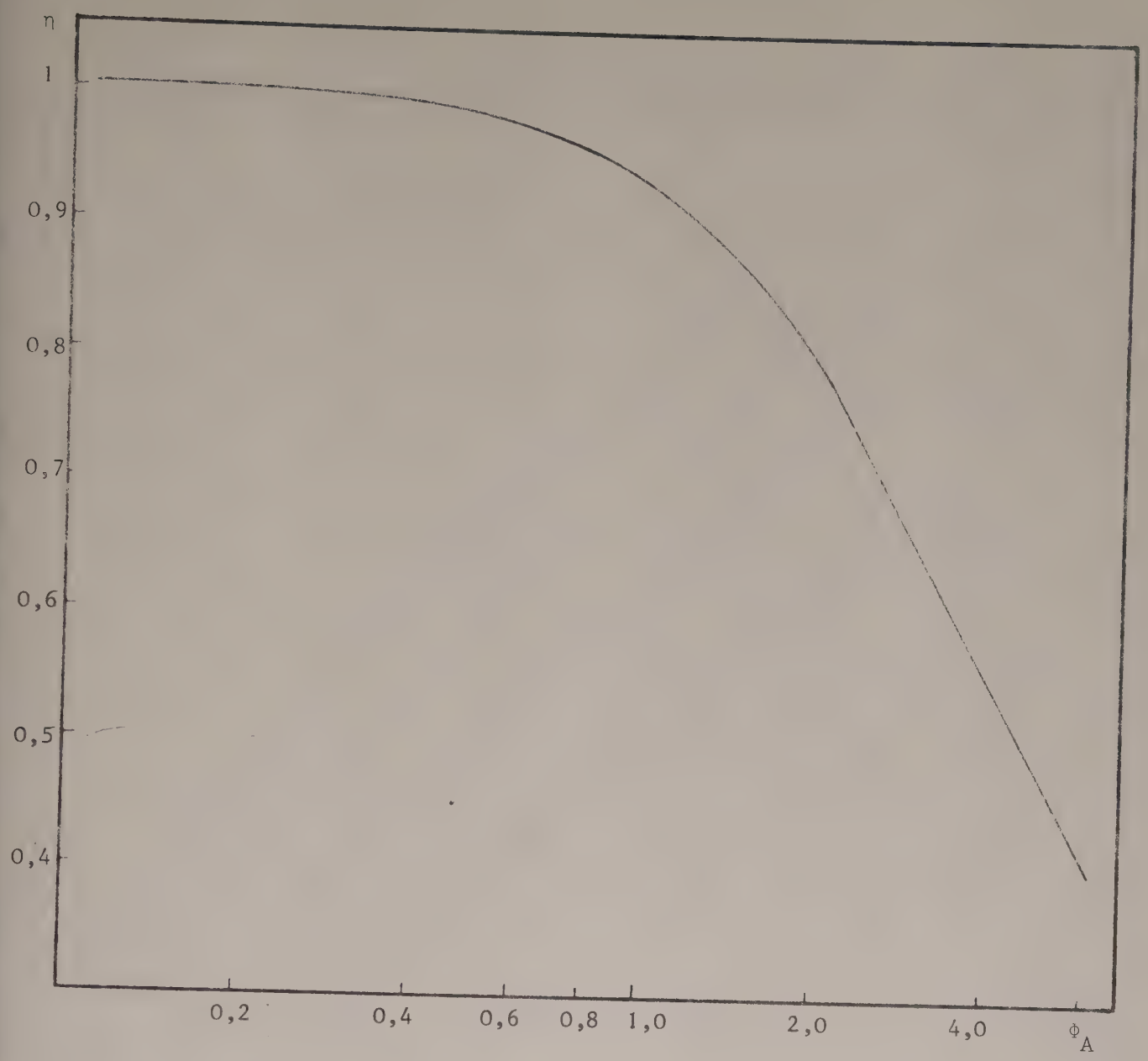


Figure A.6.1 - Efficacité d'utilisation du catalyseur

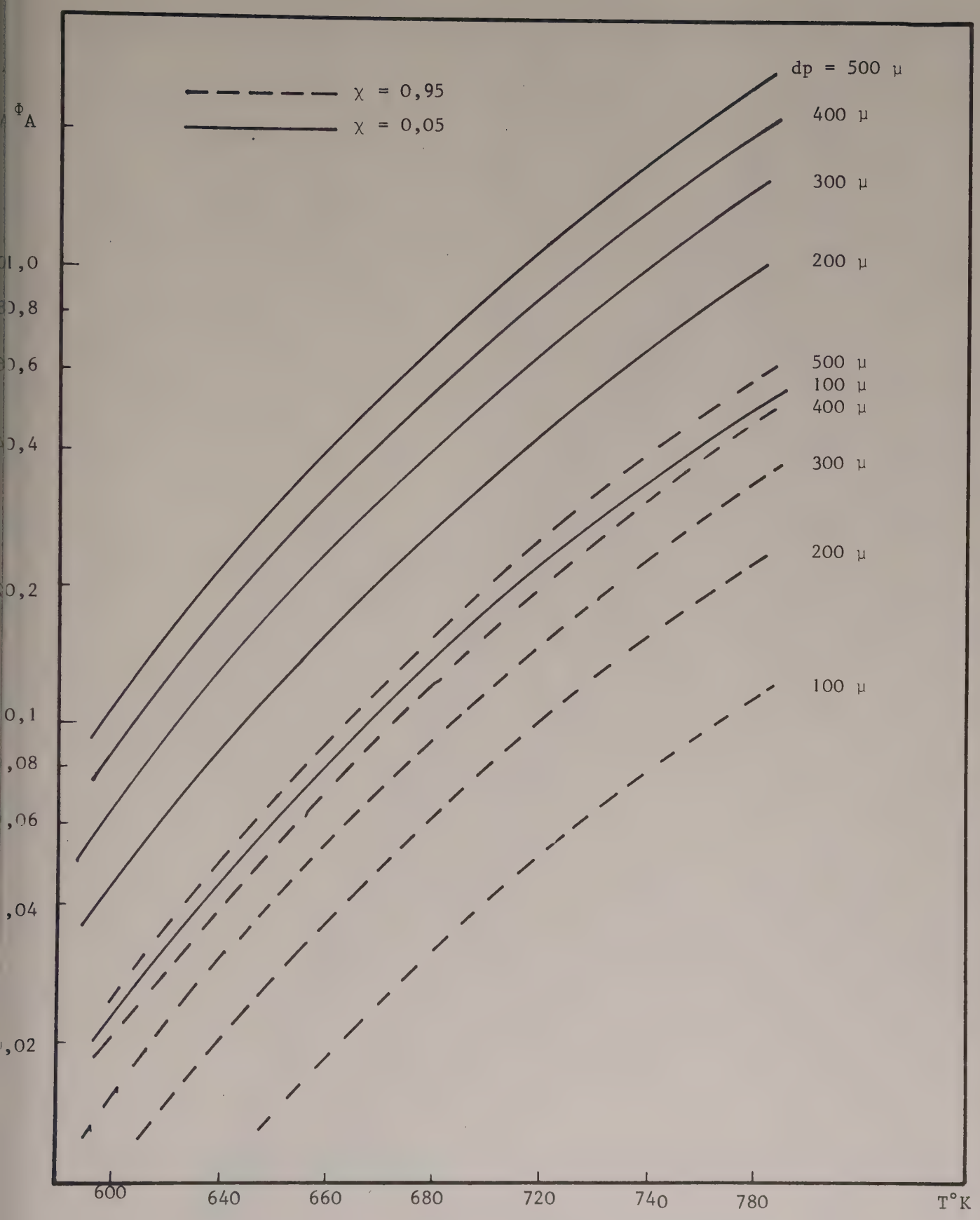


Fig. A.6.2 - Variation du critère de Thiele avec la température

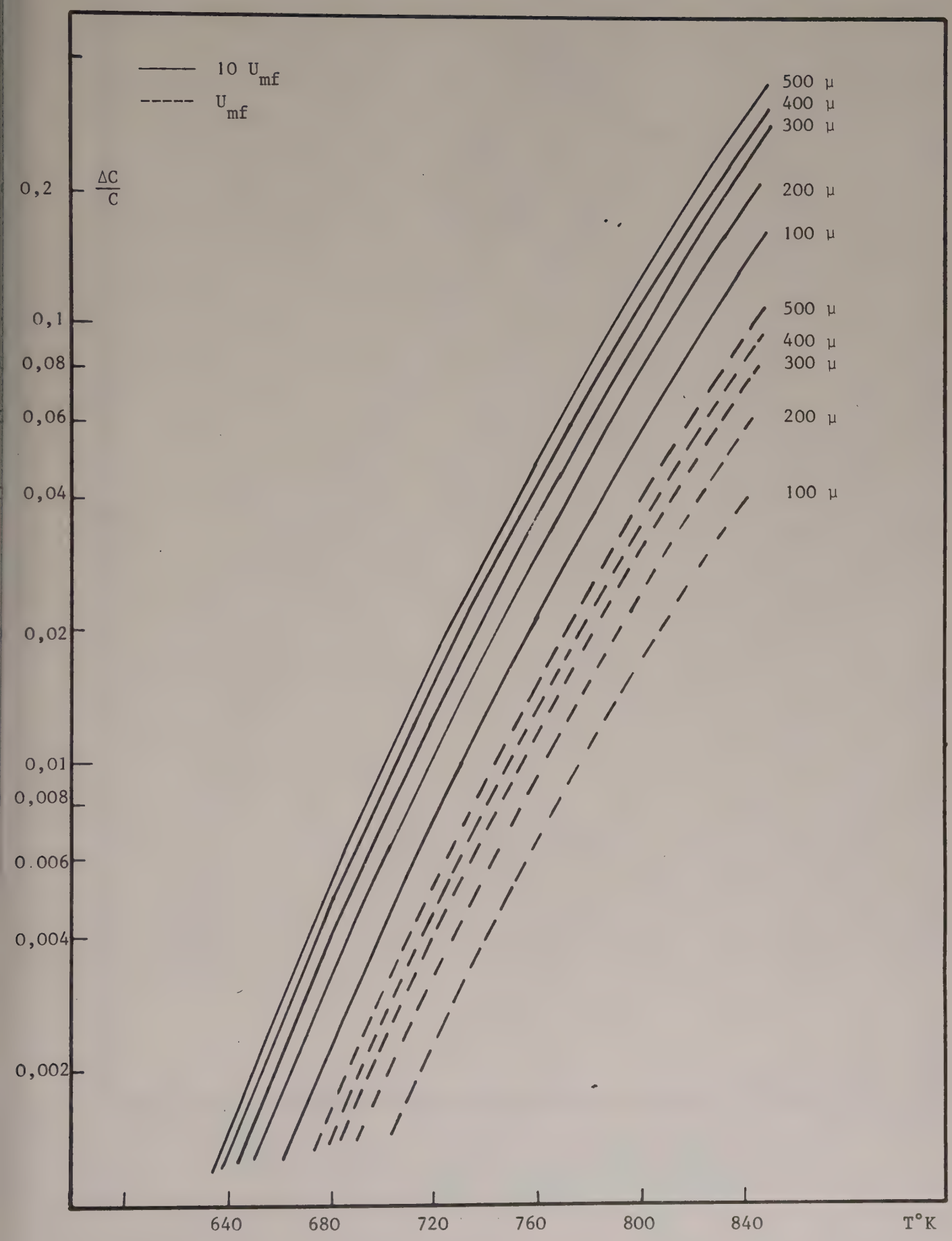


Figure A.6.3 - Influence de la température sur le gradient externe de concentration

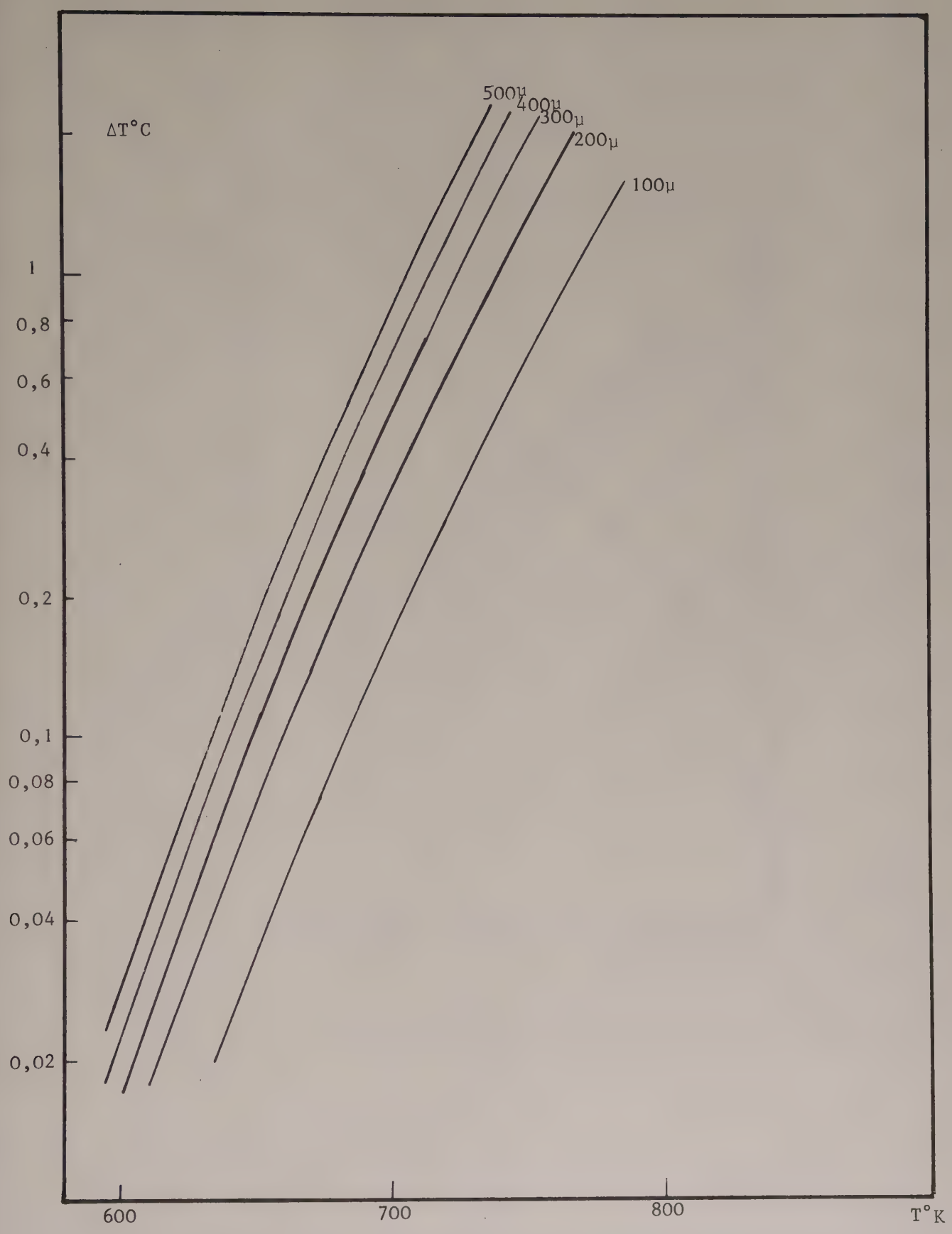


Figure A.6.4. - Influence de la température sur le gradient externe de température

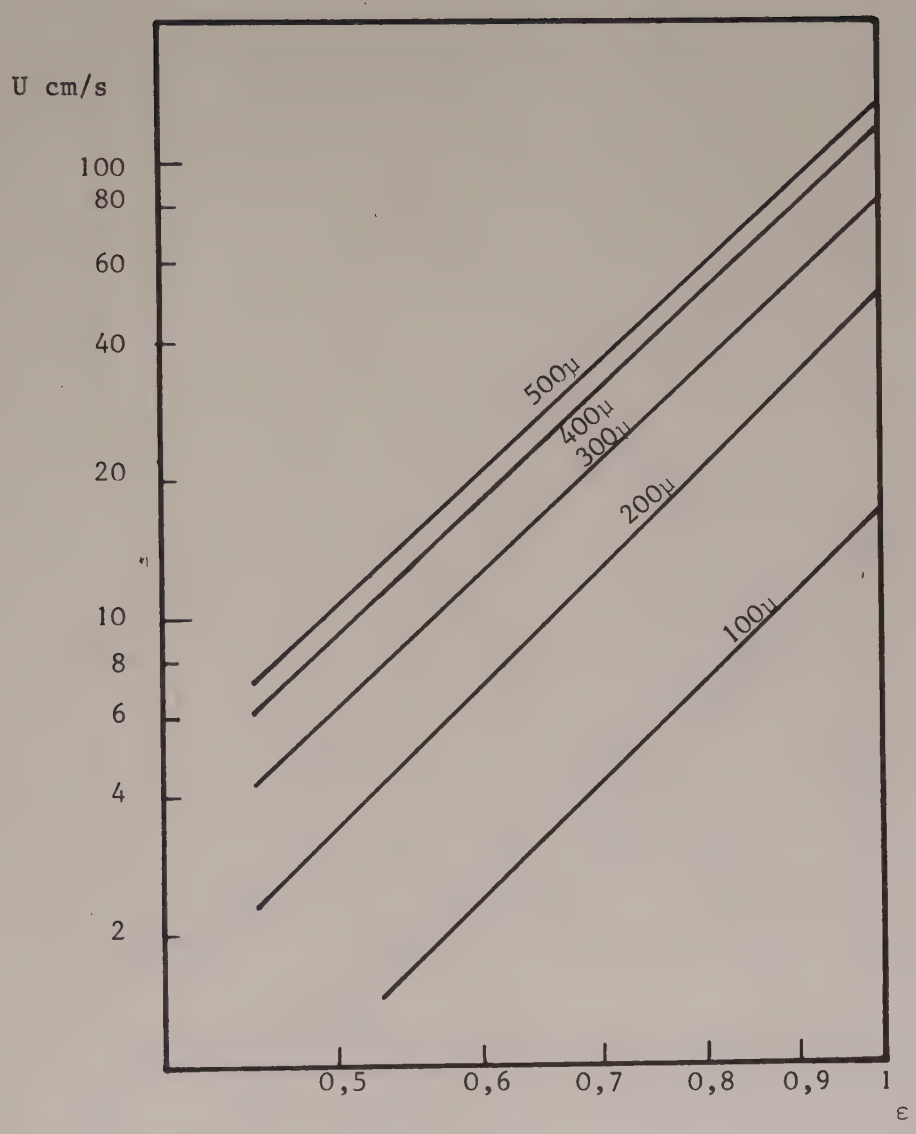


Fig. A.6.5 - Expansion des lits fluidisés garnis

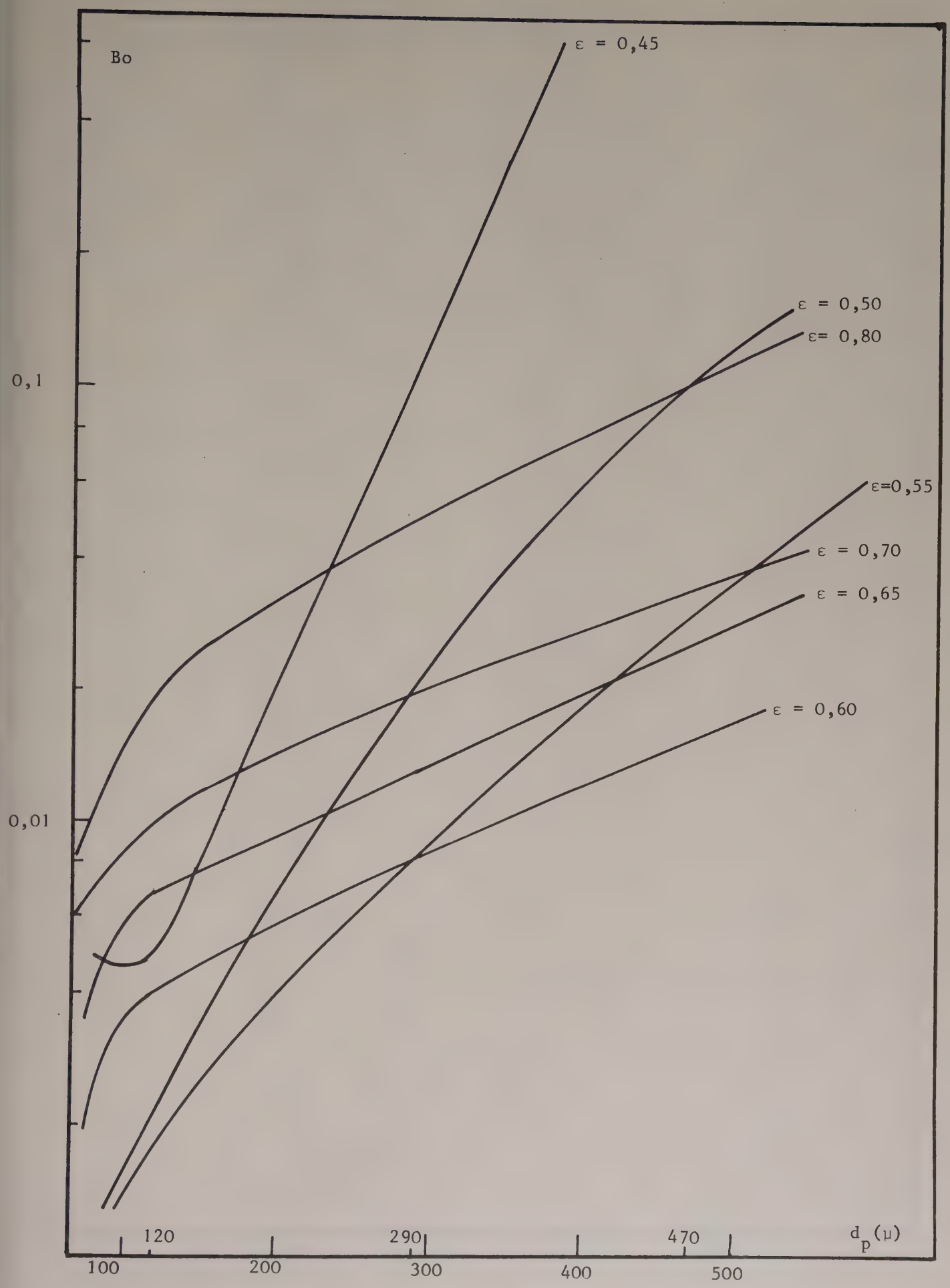


Fig. A.6.6 - Bo en fonction de dp. Procédure d'interpolation

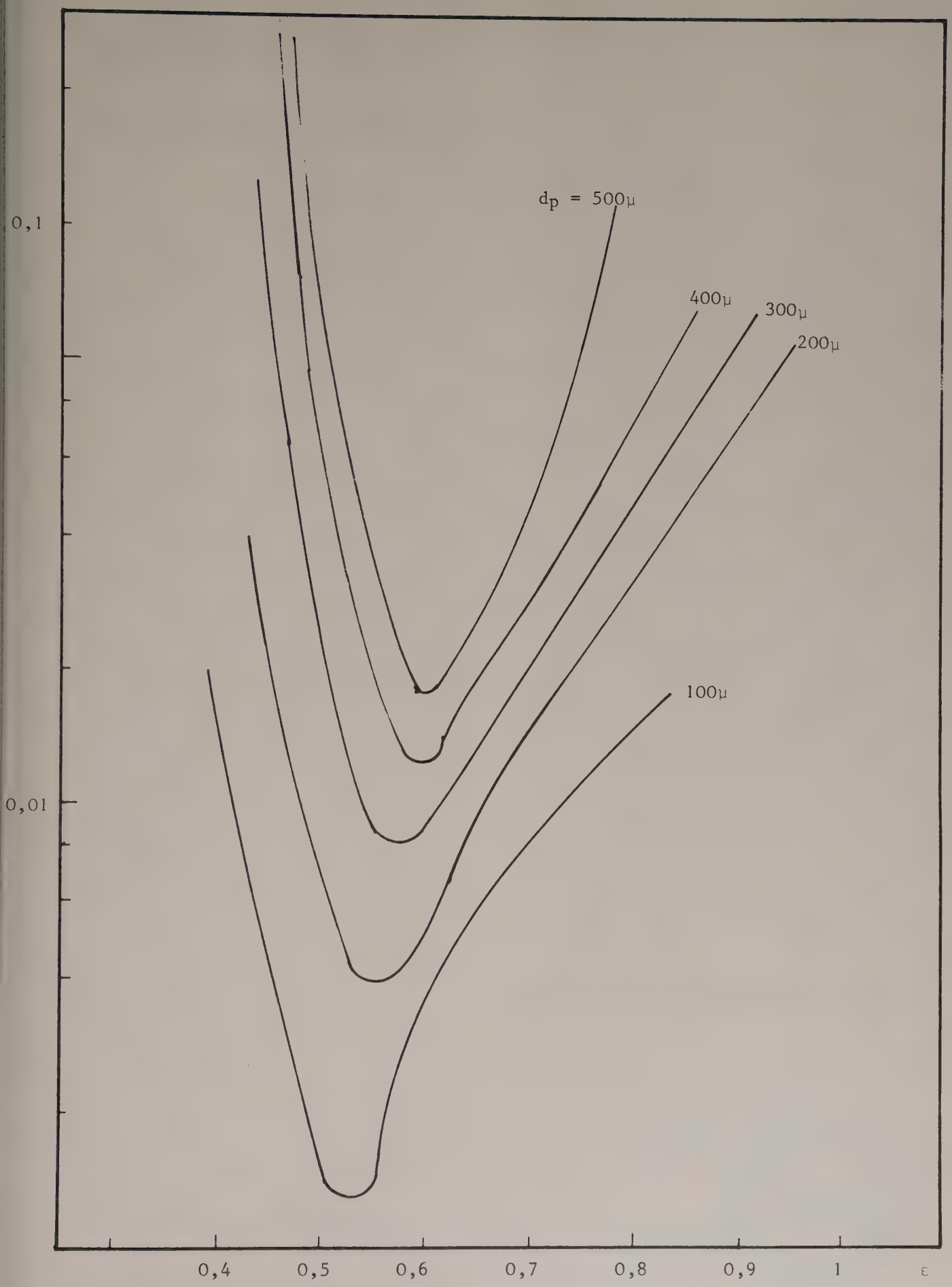


Fig. A.6.7 - Bo en fonction de ε

NOM DE L'ETUDIANT : CLAUS Guy

NATURE DE LA THESE : DOCTEUR INGENIEUR

VU, APPROUVE

& PERMIS D'IMPRIMER

NANCY, le 19 Novembre 1974

LE PRESIDENT DE L'UNIVERSITE DE NANCY I

UNIVERSITÉ DE NANCY I
Le Président

J.R. HELLY

Achevé d'imprimer le 25 novembre 1974 à l'A.D.U. - 3, rue Sellier - 54000 NANCY
Dépôt Légal N° 1348 — Université de Nancy I Editeur — 4ème trimestre 1974